



HAL
open science

Études et optimisation de réacteurs à sels fondus incinérateurs : du schéma de calcul neutronique aux scénarios de déploiement

Louiliam Clot

► To cite this version:

Louiliam Clot. Études et optimisation de réacteurs à sels fondus incinérateurs : du schéma de calcul neutronique aux scénarios de déploiement. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2025. Français. ⟨NNT : ⟩. ⟨tel-05568482⟩

HAL Id: tel-05568482

<https://hal.science/tel-05568482v1>

Submitted on 26 Mar 2026

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

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



Distributed under a Creative Commons CC BY-NC-SA 4.0 - Attribution - Non-commercial use - ShareAlike - International License

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

École doctorale : **I-MEP2 - Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Énergétique, Procédés, Production**

Spécialité : **MEP : Mécanique des fluides, Énergétique, Procédés**

Unité de recherche : **Laboratoire de Physique Subatomique & Cosmologie**

Études et optimisation de réacteurs à sels fondus incinérateurs : du schéma de calcul neutronique aux scénarios de déploiement

Studies and optimisation of molten salt burner reactors: from calculation scheme to fuel cycle simulations

Présentée par :

Louiliam CLOT

Direction de thèse :

P^{re} Elsa MERLE

Professeure des universités, Grenoble INP - UGA

Directrice de thèse

D^r Axel LAUREAU

Chargé de recherche, CNRS

Co-Encadrant de thèse

D^{re} Léa TILLARD

Ingénieure-docteure, Orano Recyclage

Co-Encadrante de thèse

Rapporteurs :

D^r Laurent BUIRON

Directeur de recherche, CEA Cadarache

P^r Andreas PAUTZ

Professeur ordinaire, EPFL

Thèse soutenue publiquement le **20 novembre 2025**, devant le jury composé de :

D^r Laurent BUIRON

Directeur de recherche, CEA Cadarache

Rapporteur

D^r Éric DUMONTEIL

Directeur de recherche, CEA Saclay

Examineur

D^{re} Lydie GIOT

Maître-assistante, IMT Atlantique

Examinatrice

D^r Axel LAUREAU

Chargé de recherche, CNRS

Co-Encadrant de thèse

D^r David LECARPENTIER

Ingénieur de recherche, EDF R&D

Examineur

P^{re} Elsa MERLE

Professeure des universités, Grenoble INP - UGA

Directrice de thèse

D^{re} Léa TILLARD

Ingénieure-docteure, Orano Recyclage

Co-Encadrante de thèse

P^{re} Anne VILCOT

Professeure des universités, Grenoble INP - UGA

Présidente




Cette thèse est rédigée dans un langage épïcène respectant les Rectifications orthographiques de 1990 et appliquant selon le contexte la règle de l'accord de majorité ou de l'accord de proximité. Elle applique en outre diverses règles traditionnelles de typographie telles que la mise en emphase des emprunts non naturalisés. Enfin, quelques utilisations éparses du point médian sont présentes dans des situations où la double énumération est difficile à mettre en œuvre.

Ce document a été compilé avec Lua \LaTeX 1.16.0 et Ti $\text{\kern-0.25ex}\kern-0.25ex$ Z 3.1.10 le 20 mars 2026.

Template disponible à l'adresse suivante :
https://github.com/WilhemynKlaetarh/template_manuscrit_UGA



Comment écrire des remerciements de thèse ?

D^r Louiliam Clot^{1,2,*} 

¹ LPSC, IN2P3/CNRS, Grenoble INP – UGA, Univ. Grenoble Alpes, 53 Avenue des Martyrs, 38026 Grenoble cedex, France

² Orano, 125 Avenue de Paris, 92320 Châtillon, France

Reçu le 3 février 2026 / Accepté le 19 février 2026 / Publié le 20 mars 2026

Résumé. La rédaction des remerciements ne suit *a priori* aucune règle bien définie. Jouant à la fois le rôle de partie la moins pertinente et à la fois la plus importante d'un manuscrit de thèse, elle reflète souvent le caractère — sobre ou excentrique — de son auteur ou de son autrice. Les remerciements de cette thèse pourront laisser juger de ce caractère. La personne qui a écrit ces lignes tient à remercier les membres de son jury de thèse, les membres de son encadrement, ses ami-es, sa famille ainsi que tous les gens qui étaient là pour elle.

1 Introduction

Bonjour, bonsoir très cher lecteur, très chère lectrice et bienvenue dans la section la plus lue et donc, conséquemment, la plus difficile à écrire d'un manuscrit de thèse. Cette difficulté est exacerbée quand, dans un élan probablement mêlé de génie et de stupidité, ceux-ci sont formulés dans une forme peu orthodoxe. Est ainsi venue la question suivante : pousser la réflexion jusqu'au bout, et donc trouver comment sectionner cette partie insectionnable, ou laisser filer au gré de la rédaction ? Et surtout, dans quel ordre formuler ces remerciements ? Par importance, si seulement cela était possible ? Par ordre chronologique ? Il apparaît rapidement que la chose la plus essentielle reste celle de n'oublier personne, peu importe l'ordre. Une quantité importante de « je » sera présente dans les lignes qui suivent. C'est parti !

2 Acknowledgements

Pour entamer ces quelques lignes, je tenais à remercier les membres de mon jury de thèse en commençant par Mme Anne Vilcot pour avoir accepté de présider celui-ci et après m'avoir accueilli, petit autiste, avec beaucoup d'écoute et de bienveillance durant mes trois années à Phelma. Merci beaucoup à MM. Laurent Buiron et Andreas Pautz d'avoir accepté de rapporter et de subir la lecture minutieuse de cette thèse. Enfin, je tiens à remercier M. Éric Dumonteil,

Mme Lydie Giot et M. David Lecarpentier pour avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.



FIGURE 1 – www.youtube.be/bpUvYQXVYPQ

S'il ne devait y avoir qu'une seule personne à qui je dois tout ça, il n'y aurait personne d'autre à part Elsa. Que dire... Merci pour tout. Merci d'être la personne que tu es, avec tes forces, tes faiblesses, ta capacité à surmonter les épreuves et qui force l'admiration. Avoir été ton étudiant a été un honneur et c'est un honneur d'être maintenant un collègue. Mention spéciale à ta pugnacité légendaire quand il s'agit d'adapter des recettes de gâteau afin que tout le monde puisse en profiter ! Merci pour tout.

Laura, merci de m'avoir fait confiance en 2021 pour intégrer le monde merveilleux des RSF. Je n'au-

*. e-mail : louiliam.clot@lpsc.in2p3.fr

rais pas pu dire, il y a 5 ans maintenant, où cela m'a amené aujourd'hui. J'ajoute à cela Daniel, qui a lui aussi fait ce pari à l'époque. Merci pour tout ce que tu as pu faire, avec Elsa, dans ce domaine. Merci pour les discussions toujours enrichissantes, pour comprendre et refaire le monde. Et un "merci" tout particulier pour la création — avec toute l'aide depuis des années de nombreux doctorant-es qui ont laissé des bouts d'âme à l'intérieur — de la toute première intelligence artificielle et autonome : REM, dont j'ai pris l'immense "plaisir" à trifouiller dans les basfonds pour tenter la tâche herculéenne de le décrire proprement (malgré sa conscience propre)!

Léa, je te renouvèle mes remerciements pour les 6 mois à Orano et pour toute la thèse qui s'en est suivie. Merci pour tous ces moments, pour ton écoute, pour tes conseils, pour les rires. Pour ta ténacité sur le fait de me faire quantifier mes résultats, ce qui finalement permet de vachement bien comprendre les choses, il est vrai! Tu es une encadrante hors pair et j'espère de tout cœur pouvoir continuer à travailler ensemble dans le futur (et enfin rencontrer Uranium, qui ne s'appelle pas Uranium, hélas...). Je remercie également Gérald pour l'accueil à Orano et pour le lancement de la thèse, pour toutes les discussions sur la chimie des sels et pour avoir relevé mon intransigeance en matière d'informations ferroviaires!

Axel. Merci pour tout. Pour les discussions, les questionnements (tous les batemaniens se devraient d'avoir un comparse boltzmanien dans son entourage!), les explications, les longues minutes qui devenaient des heures. Pour l'écoute, la compassion, dans les moments de doute, et pour ton Habilité à te rendre Disponible de façon tout à fait Remarquable! Tu es un collègue en or. Je remercie également Michel qui, fort de ses nombreuses vies passées, apporte toujours un éclairage instructif dans nos discussions et qui a réussi l'exploit de me faire apprécier la chimie. Je te remercie chaleureusement pour cela!

Tou-tes les doctorant-es de l'équipe MSFR étendue, les « fondus du sel » passés, présents mais aussi futurs. Laura pour l'accueil, Thibault pour les discussions, Hugo pour tes mots et Thomas pour avoir daronné la joyeuse petite troupe. Les petits qui vont soutenir cette année : Anna, merci d'être qui tu es et ne change jamais pépette; Max, avec ton cœur en or,

continue de faire du bruit et ce pendant longtemps; Jad, venu de Nantes et qui s'est très bien acclimaté aux montagnes; et puis Adrien "tUnGsTeNnArUtO", tu découvriras bientôt que le seul qui doute de toi te regarde tous les matins dans ton miroir. Je vous souhaite à toutes et tous « bon chance » pour la suite! Et puis le futur, Léo à qui je souhaite un très bon courage dans ces moments pas faciles, et Colin que j'espère recroiser un jour! Je n'oublie bien évidemment pas tous les stagiaires passés entre nos murs, en commençant par Alexandre que je remercie une nouvelle fois pour son excellent travail de stage et pour m'avoir fait découvrir la passion de l'encadrement. Et je salue également Aurélien, Roman, Hugo "le GOAT" — qui a gentiment traduit la figure 3.6 spécialement pour ce manuscrit — et Colin pour leur passage qui ont laissé de grands vides tout au long de ces trois années!

Un immense merci à toutes et tous les collègues que j'ai pu croiser au cours de ces trois années, que cela soit au sein des projets ISAC et MIMOSA ou ailleurs. Côté CNRS, je remercie chaleureusement Sylvie — qui a gentiment accepté de faire partie de mon CSI¹ — et Céline pour leur accueil à l'IJCLab et à qui je dédie ma compréhension de toute la chimie du chapitre 2. Lydie, pour le duo WP3, j'espère croiser de nouveau des « L. CLOT, L. GIOT » à l'avenir! Xavier, pour ta vision intéressante et pertinente sur la filière française et qui a alimenté la section 1.4 de ce manuscrit, merci beaucoup pour les échanges!

Côté Orano, je remercie Bertrand, Elisa et Isabelle pour les échanges et la confiance que vous m'avez accordée. Côté CEA, un merci tout particulier à Camille et Johann pour les (nombreux) échanges de mails pour mener à bien toutes les simulations d'ARAMIS-A et s'y retrouver dans l'immensité du projet ISAC! Au plaisir de vous recroiser et un bon courage particulier à Johann pour sa revanche! Merci également à Christophe et Vincent d'avoir supporté toutes mes questions incessantes! Côté EDF, Paul-Édouard, David et Paul, et je souhaite un bon courage à Paul-Édouard pour la dernière ligne droite avant la soutenance! Enfin, côté Framatome, je salue Régis qui a aussi subi mes questions! Un immense merci aux organisations des projets ISAC et MIMOSA qui furent des expériences incroyables.

1. Dont la rédaction des rapports préfigure les affres de celle du manuscrit chez certain-es doctorant-es

Je termine le tour des collègues en remerciant les services « Missions » et « Informatique » du LPSC pour toutes les aides si gentiment proposées quand des problèmes survenaient, avec tout particulièrement Agnès qui m’a sauvé plus d’une fois, merci beaucoup ! Merci également à Emmanuelle, toujours disponible pour répondre à nos questions et pour dénicher des livres introuvables (l’intankable *Trémillon* de 1971 qu’il a fallu faire venir d’Orsay et qui m’a tant appris sur la chimie en solvants non-aqueux). Enfin, je tenais à remercier chaleureusement Laurent, le directeur du LPSC, pour l’accueil dans son unité et pour la disponibilité et l’écoute quand c’était nécessaire. Ce fut sincèrement apprécié.

Je tiens à remercier Emmanuel et Frédéric, respectivement mes professeurs de physique-chimie en MPSI et de mathématiques en MP. Emmanuel, pour avoir décelé en moi un futur docteur dès 2016, pour m’avoir parlé de Phelma le premier et pour m’avoir encouragé tout au long de mon parcours. Frédéric, pour ces deux ans en MP qui, certes ne furent pas faciles, mais qui restent encore aujourd’hui dans mes plus belles années d’études. Tu m’as appris le goût de la rigueur mathématique qui, encore aujourd’hui, accompagne ma démarche scientifique, et plus important encore, tu m’as appris la différence entre la bonne et la mauvaise confiance en moi. C’était un honneur de vous avoir lors de ma soutenance et vous savez que vous avez mon amitié sincère.

Je remercie également mes professeurs de Phelma, que je croise régulièrement et dont certains étaient présents lors de ma soutenance. J’en profite pour remercier l’association Grenoble INP Alumni, que j’ai présidée durant 18 mois en pleine thèse. Merci Jacques pour la confiance accordée pour te succéder et merci Thomas d’avoir repris le flambeau quand c’était nécessaire. Et alors, chère lectrice, cher lecteur, si je m’attendais à écrire cela un jour : je remercie également le parti Équinoxe pour m’avoir investi aux élections législatives de 2024. Une expérience courte mais très intense, en plein cœur de la thèse et au lendemain d’une rupture amoureuse, parce que pourquoi pas après tout ? Toujours dans les associations, je remercie les membres des Voix du Nucléaire pour leur confiance ainsi que les Neutrons dont certains sont venus jusqu’à Grenoble m’écouter : Ty, François “Dragon”, un immense merci. Et je salue également Timothée avec qui je dois encore boire ce café ! Enfin, je finis ce paragraphe par remercier le groupe Phideaux,

que j’ai découvert l’été de la rédaction et dont j’ai littéralement poncé les deux albums présentés figure 2 pendant toute la rédaction. Cela m’a valu d’être top 4 auditeurs dans le monde et je ne sais pas si je dois en être fier !



FIGURE 2 – Doomsday Afternoon et Number Seven

Je remercie très chaleureusement mes ami-es, proches et loin, d’avoir été là et de l’être toujours. Les Phear et les PhDear pour commencer. Bastien, Khoukhou, Laurent, Mathieu Bleu, Dr^e Maylis qui vient de soutenir, Valou, Yann qui a très gentiment capté ma soutenance quand je galérais avec Zoom et qui m’a permis d’avoir un enregistrement (voir figure 1). Merci pour le soutien durant ces trois années et je vous souhaite bonne chance et bon courage à vous aussi, on va le faire ! Merci également à Clément, Epelinr, Marie, Marion (ou l’inverse), Mathieu Gogo, Maximent, Mohand, Naveen pour les non-masochistes. Je remercie les cernéais pour leur soutien (et pour avoir veillé sur ce magnifique panneau Exit) : Bob, Esteban, Gauthier et Amélie à qui je souhaite tous mes vœux de bonheur, Jérémie, Thomas, Papac et Pigište toujours dans nos cœurs (ou encore à Corinthe). Maintenant, il va pouvoir être relou à toujours dire qu’il est deauqueteurent... Anaïs, Élise-Marie, Émilie, Océane, Silas pour m’avoir suivi de loin depuis la prépa. Le CR, avec Hamy, Jason, Nath, Sam, Soren, Paul-Esteban qui est venu me voir et bien sûr, mon meilleur ami, Narcisse. Jeannententxyz^{eutectique} pour les roues libres sans fin 🍷🍷. Agathent, Anna, Aphie, Aurélien, Béa, Bertrand, Céphas, Chiara, Clémence, Drey, Eden, Fanny, Francis, Liz, Loris, Marie, Martin, Nox, Romain, Sarah, Yoanna. Gabriel, Hermine et Jaad à qui je souhaite bonne chance pour leur thèse. Nouhaïla que je remercie chaleureusement pour être venue me soutenir et enfin Hana, pour son entrée fracassante dans ma vie et pour m’avoir donné la « vraie » recette des *carbonara* pour mon anniversaire. Merci à vous toutes et tous de faire partie de ma vie ♥

Je remercie également ma famille pour leur soutien indéfectible. Papa, maman, pour avoir fait tout votre possible pour que cette thèse se déroule bien et pour m'avoir supporté dans les moments difficiles. Malgré mon caractère, vous n'avez jamais cessé de croire en moi et ça compte. Merci pour tout, je vous aime. Juléo, mon petit frère, pour être malgré tout une source d'inspiration et fierté qui ne tarit jamais. Je te remercie également pour avoir pris le temps de m'aider à corriger ce long document !! Même si cela a nécessité de retirer tous les circonflexes de « sûreté » et de « coût » mais bon... il faut assumer ses choix ! Je te souhaite de réussir tous les projets que tu entreprendras et j'espère pouvoir être là pendant longtemps encore. Mes grands-parents, des deux côtés, pour le soutien, les appels, et pour avoir fait le déplacement jusqu'à Grenoble pour m'écouter parler de réacteurs nucléaires pendant deux heures. Merci d'avoir été là, ça compte vraiment pour moi. Et je

remercie également Phillippe pour le déplacement et l'intérêt. Tu as mon numéro, tu m'appelles avec grand plaisir. Je finis par une petite pensée pour toutes les boules de poils qui sont parties durant ces trois années. Zorbas, Albert et Ninette qui seront toujours là, avec nous.

Enfin, j'aimerais terminer ces quelques lignes en remerciant ma meilleure amie, ma grande sœur, Lyne. Merci d'avoir été là comme personne et ce, jusqu'au bout de cette aventure parfois si difficile. Merci d'avoir été la petite lumière dans l'obscurité. Merci d'avoir été dans ma vie. *Karend drivÿn pil enia*. Je t'aime ♥

3 Conclusion

Merci pour tout.

┐Loulou.



Zorbas, 2008–2022

Table des matières

	Page
Remerciements	i
Tables	v
Table des matières	v
Table des figures	ix
Liste des tableaux	xiii
Table des interludes	xv
Table des sigles et des acronymes	xvii
Introduction générale	xxii
I Physique, chimie et historique	3
1 L'énergie nucléaire et la physique des réacteurs nucléaires	5
<i>Introduction du chapitre</i>	7
1.1 État des lieux de l'utilisation de l'énergie nucléaire en France et dans le monde	7
1.1.1 Une épopée mondiale de l'énergie	7
1.1.2 L'énergie nucléaire dans le monde	9
1.1.3 La France : un pays nucléaire	11
1.2 Éléments de neutronique et de physique des réacteurs nucléaires	14
1.2.1 Physique nucléaire simplifiée	14
1.2.2 Notions de neutronique	17
1.2.3 De la neutronique au combustible	22
1.3 Les réacteurs et le cycle du combustible français	29
1.3.1 Illustration du principe de fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée	29
1.3.2 Le parc français et son déploiement	29
1.3.3 Le cycle du combustible français	31
1.4 Une perspective d'incinération des déchets nucléaires	33
1.4.1 Perspectives d'évolution du parc français et du cycle du combustible associé	33
1.4.2 Les déchets nucléaires et le statut ambigu du plutonium	34
1.4.3 L'objectif de cette thèse : l'incinération des transuraniens	36
<i>Conclusion du chapitre</i>	37
2 Les réacteurs à sels fondus	39
<i>Introduction du chapitre</i>	41
2.1 Éléments de chimie des sels fondus	41
2.1.1 Nature des sels fondus	41
2.1.2 Types de sels utilisés	41
2.1.3 Propriétés physico-chimiques déterminantes	44
2.2 Principe de fonctionnement et tour d'horizon des différentes familles de RSF	48

2.2.1	Un réacteur à combustible liquide	48
2.2.2	Alimentation et traitement	50
2.2.3	Un réacteur polyvalent, multiphysique et multiéchelle	54
2.3	Historique et projets français et internationaux	56
2.3.1	De l'armée américaine à EDF	56
2.3.2	Un réacteur de IV ^e génération à l'aube du XXI ^e siècle	58
2.3.3	Un puissant regain d'intérêt	61
2.4	Concepts de réacteurs à sels fondus étudiés dans cette thèse	65
2.4.1	Le MSFR de référence : un réacteur grenoblois	65
2.4.2	RAPTOR : un incinérateur de plutonium et de transuraniens	65
2.4.3	ARAMIS-A : pour gérer l'américium d'un parc de RNR-Na français	67
	<i>Conclusion du chapitre</i>	68
 II Outils d'étude et développements réalisés		69
 3 Les outils « classiques » autour de la simulation d'un RSF		71
	<i>Introduction du chapitre</i>	73
3.1	Les codes de transport neutronique	73
3.1.1	Principe général	73
3.1.2	Le code MCNP	74
3.2	Les codes de calculs neutroniques en évolution	80
3.2.1	Le schéma de calcul standard	80
3.2.2	Le code SMURE	80
3.3	Spécificités des RSF et adaptation des codes d'évolution	82
3.3.1	Adaptation pour les RSF	82
3.3.2	Le code REM	83
3.3.3	Autres codes d'évolution adaptés aux RSF	91
3.4	Les codes de scénario de déploiement nucléaire	92
3.4.1	Définition pragmatique d'un scénario	92
3.4.2	Le code ISF	92
3.4.3	Autres codes de scénarios existants	94
3.5	Autres codes et outils utilisés dans la thèse	95
3.5.1	Présentation rapide du matériel informatique utilisé	95
3.5.2	L'algorithme Sherlock	95
3.5.3	Le constructeur de géométries REM	96
	<i>Conclusion du chapitre</i>	99
 4 Adaptation des outils pour l'étude de RSF incinérateurs		101
	<i>Introduction du chapitre</i>	103
4.1	Les RSF incinérateurs	103
4.1.1	L'incinération des actinides mineurs	103
4.1.2	Définition de critères de performance d'incinération	105
4.1.3	Objectifs d'un RSF incinérateur	111
4.2	Contribution à l'adaptation des outils de modélisation de RSF incinérateurs	113
4.2.1	Problématique	113
4.2.2	De nouveaux développements dans les codes ERE et REM	113
4.2.3	Application et premiers résultats sur le MSFR de référence	119
4.3	Outils d'analyse poussée	123
4.3.1	Relecture et interface graphique automatisées	124
4.3.2	Construction automatisée de la géométrie	126
4.3.3	Méthodologie de modélisation d'un réacteur	130

<i>Conclusion du chapitre</i>	131
III Évolutions, études et scénarios	133
5 Caractérisation et développements de RSF incinérateurs	135
<i>Introduction du chapitre</i>	137
5.1 RAPTOr, pour l'incinération des transuraniens	137
5.1.1 Présentation des concepts	137
5.1.2 Stratégies de gestion des RAPTOrs définies pour le projet MIMOSA	139
5.1.3 Évaluation des critères de performance	142
5.2 ARAMIS-A, pour l'incinération de l'américium	145
5.2.1 Huit versions d'ARAMIS-A	145
5.2.2 Les schémas de calcul ISAC	147
5.2.3 Comparaisons et sensibilités sur les esquisses ARAMIS-A	152
5.3 ARAMIS-B, une esquisse alternative du concept ARAMIS-A	156
5.3.1 Mise en contexte	157
5.3.2 Ajouter une couverture fertile à ARAMIS-A	157
5.3.3 Sensibilités autour d'ARAMIS-B	161
<i>Conclusion du chapitre</i>	164
6 Scénarios de déploiement	165
<i>Introduction du chapitre</i>	167
6.1 Simulation du parc français	167
6.1.1 Deux scénarios à l'étude	167
6.1.2 Simuler les REP français	169
6.1.3 Simplification et hypothèses sur le parc	170
6.2 Des RSF en complémentarité du parc français	173
6.2.1 Le scénario du <i>Benchmark</i> ISAC	174
6.2.2 Le scénario <i>TerraWater</i>	179
6.2.3 Un scénario alternatif au <i>benchmark</i> ISAC et une relation symbiotique avec les REP	182
<i>Conclusion du chapitre</i>	188
Conclusion générale et perspectives	188
Bibliographie	I
Annexes	XIII
A Liste des réacteurs étudiés au cours de cette thèse et des matériaux les composants	XIII
A - 1 Réacteurs étudiés	XIV
A - 2 Composition des matériaux utilisés	XIV
B Banque d'illustrations additionnelles	XVII
B - 1 Diagramme DOT du scénario <i>Benchmark</i>	XVII
B - 2 Illustrations issues de la soutenance de thèse	XX
B - 2.1 Illustration du cycle du combustible envisagé	XX
B - 2.2 Vecteur isotopique dans la couverture d'ARAMIS-B	XX
B - 2.3 Réserves en neptunium et en curium	XXI
B - 2.4 Illustration des réacteurs utilisés	XXII

C Complément d'information sur les codes ERE et REM	XXIII
C - 1 Configuration de ERE	XXIV
C - 1.1 Configuration d'un REACTEUR	XXIV
C - 1.2 Configuration d'une FORME	XXVI
C - 2 Configuration de REM	XXVII
C - 2.1 Configuration de l'EVOLUTION	XXVII
C - 2.2 Configuration de l'INVENTAIRE	XXVII
C - 2.3 Configuration des COMPOSITE	XXVIII
C - 3 Descriptions simplifiées de la géométrie du RAPTOR dans les fichiers d'entrée du Constructeur et des codes ERE et MCNP	XXX
C - 3.1 Fichier d'entrée – Constructeur	XXX
C - 3.2 Fichier d'entrée – Code ERE	XXXI
C - 3.3 Fichier d'entrée – Code MCNP	XXXII
D Index sur les notations	XXXIII
D - 1 Lettres latines	XXXIV
D - 2 Lettres grecques	XXXIV
D - 3 Notations diverses ou composites	XXXV
D - 4 Unités	XXXV
E Publications et travaux connexes	XXXVII
E - 1 Articles et actes de conférence	XXXVIII
E - 1.1 En premier auteur	XXXVIII
E - 1.2 En co-auteur	XXXVIII
E - 2 Livrables	XXXVIII
E - 2.1 Projet national ISAC	XXXVIII
E - 2.2 Projet européen MIMOSA	XXXIX
E - 2.3 Projet européen ENDURANCE	XXXIX
E - 3 Rapports de stage	XXXIX
E - 3.1 En tant que stagiaire	XXXIX
E - 3.2 En tant qu'encadrant	XXXIX

Table des figures

	Page	
1.1	Consommation d'énergie et émissions de CO ₂ à l'échelle mondiale	8
1.2	Température journalière de l'air à la surface de la Terre (jusqu'au 20 novembre 2025)	9
1.3	Taux de mortalité et émissions de gaz à effet de serre de différentes sources d'énergie	9
1.4	Frise chronologique retraçant certaines dates importantes de l'énergie nucléaire en France et dans le monde	10
1.5	<i>Log Scale</i> , webcomic	11
1.6	Production d'uranium et d'électricité d'origine nucléaire dans le monde	12
1.7	Production nette d'électricité par source d'énergie en France	13
1.8	Carte de l'Europe des intensités carbone le 19 janvier 2025	13
1.9	Table des isotopes par type de désintégration majoritaire	14
1.10	Illustration de la fission induite	15
1.11	Rendements de fission de l' ²³⁵ U et du ²³⁹ Pu en fonction du nombre de masse et de l'énergie du neutron incident provenant de la base de données JEFF 3.3	16
1.12	Nombre moyen de neutrons produits par fission en fonction de l'énergie du neutron incident	16
1.13	Illustration de la capture neutronique	16
1.14	Illustration de la diffusion élastique et inélastique	17
1.15	Sections efficaces de fission et de capture pour l' ²³⁵ U, le ²³⁹ Pu et l' ²⁴¹ Am	17
1.16	Speçtres neutroniques de différents types de réacteurs	20
1.17	Speçtre d'émission des neutrons prompts et retardés de l' ²³⁵ U et du ²³⁹ Pu	20
1.18	Effet de la température sur des résonances de diffusion élastique et de capture de l' ²³⁸ U	22
1.19	Rapport entre la section efficace de fission et celle d'absorption pour des actinides d'intérêt	23
1.20	Diagramme NZ de certains actinides avec leur mode principal d'apparition et illustration des cycles de régénération	24
1.21	Rapport de branchement de l' ²⁴² Am pour plusieurs bases de données	25
1.22	Illustration d'un cycle de régénération <i>i/j</i>	26
1.23	Neutrons disponibles après régénération et prise en compte des captures	27
1.24	Principe de fonctionnement d'un REP	28
1.25	Puissance nucléaire électrogène installée en France, en Europe et dans le monde depuis 1960	30
1.26	Le parc électrogène français en 2025	31
1.27	Vue schématique du cycle du combustible REP français en 2018	32
1.28	Illustration du volume des déchets de haute activité conditionnés produits en France jusqu'en 2020	35
2.1	Speçtres typiques d'un réacteur à sels fluorures et à sels chlorures	42
2.2	Diagramme de phase du système NaCl – PuCl ₃	43
2.3	Diagramme ternaire NaCl – MgCl ₂ – PuCl ₃ avec la ligne eutectique mise en évidence	44
2.4	Diagrammes de prédominance de l'uranium et du plutonium dans un sel chlorure à base NaCl et le sel NaCl – UCl ₃ – PuCl ₃ (80-10-10 %mol) à 600 °C	46
2.5	Détermination de l'état et de la valence d'un élément	48
2.6	Schéma de principe du traitement des sels chlorures NaCl – AnCl ₃	51
2.7	Comparaison de potentiels standards rédox d'actinides et du magnésium	52

2.8	Mise à jour du schéma de traitement pour les sels $\text{NaCl} - \text{MgCl}_2 - \text{AnCl}_3$	53
2.9	Taxonomie des différentes familles de RSF	55
2.10	Visualisation multiéchelle des champs d'études sur les réacteurs à sels fondus présentés dans cette thèse	55
2.11	Le Convair NB-36H en vol	56
2.12	Photographie du cœur, des pompes et de l'échangeur de chaleur du MSRE	57
2.13	Vue conceptuelle du MSBR	58
2.14	Les six concepts retenus par le GIF	59
2.15	Principe de fonctionnement d'un RNR-Na	60
2.16	Histoire des projets, des réacteurs, des thèses et des HDR au sein de l'équipe MSFR	62
2.17	Logos des projets ISAC et MIMOSA	62
2.18	Évolution de la fréquence d'occurrence des variations orthographiques et de casse de « RSF » dans les sources imprimées en langue française entre 1950 et 2022	64
2.19	Illustration du MSFR de référence	64
2.20	Illustration d'un RAPTOR	65
2.21	Organisation des travaux de thèse au sein du projet MIMOSA autour du RAPTOR	66
2.22	Vue conceptuelle d'ARAMIS-A V1.5	66
2.23	Organisation des travaux de thèse au sein du projet ISAC	67
3.1	Exemples de discrétisation multiéchelle de la géométrie d'un REP pour un code déterministe	74
3.2	Parcours de deux neutrons dans les matériaux m et m' en <i>surface tracking</i>	75
3.3	k_{eff} et entropie de Shannon en fonction du nombre de cycles pour différents nombres de neutrons sources	77
3.4	Écart entre la section efficace de capture du ^{240}Pu avec les méthodes multigroupe et ponctuelle	79
3.5	Principe d'un calcul neutronique en évolution	80
3.6	Détail du calcul d'évolution dans SMURE	81
3.7	Organisation des différentes échelles de pas (Illustration)	84
3.8	Principe de fonctionnement du code ERE à son lancement	85
3.9	Exemple d'extraction définie par une usine SUR	86
3.10	Principe d'organisation des pas REM et évolution dans le code REM	87
3.11	Les différents modes d'interpolation f_1 , f_2 et f_3	87
3.12	Illustration de l'organisation des pas REM et évolution dans le code REM	88
3.13	Pictogrammes et conventions colorées des éléments du code ISF	93
3.14	Principe de fonctionnement de l'algorithme ISF à chaque pas	94
3.15	Fichiers de sortie Sherlock illustrant la recherche	95
3.16	Traduction des informations pour construire la géométrie	96
3.17	Les différentes formes gérées par le code ERE	97
3.18	Exemple de construction d'un cœur cylindrique (traduction de la figure 3.16)	98
4.1	chaîne d'incinération simplifiée du ^{239}Pu	104
4.2	chaîne de Markov absorbante des captures pour les principaux isotopes considérés	104
4.3	$N_{n,i}$ de quelques actinides d'intérêt pour différentes profondeurs de \mathcal{C}_i	108
4.4	Visualisations MCNP de la géométrie du MSFR-CI avec le vase d'expansion	114
4.5	Détail des différentes étapes pendant un pas MCNP sur un débit de chlore	117
4.6	Visualisation de l'évolution de la matrice jacobienne	117
4.7	Alimentation instantanée et cumulée en ^{233}U et réactivité dans le cœur du MSFR	122
4.8	Quelques pages de l'interface REMGui avec le MSFR de référence pour illustration	125
4.9	1/16 ^e du circuit combustible du MSFR optimisé pour la thermohydraulique et utilisé pour les études neutroniques	126
4.10	Conventions « plénum court » à gauche et « plénum long » à droite	127
4.11	Cotes d'une géométrie type RAPTOR (coupe axiale)	128

4.12	Réacteur avec une boule de B_4C autour	129
4.13	Méthodologie de modélisation d'un réacteur	130
5.1	Masse de sel combustible et somme molaire des valences pour différentes stratégies d'alimentation	141
5.2	Position des sels combustibles sur le diagramme ternaire pour différentes stratégies d'alimentation	141
5.3	Rendement d'incinération des actinides	142
5.4	Bilan de production de l'américium (à gauche) et du curium (à droite)	143
5.5	Bilan de production de l'américium (à gauche) et du curium (à droite)	144
5.6	Proportion de fission des actinides	144
5.7	Illustration du calcul des pseudopériodes d'extraction avec normalisation du volume	148
5.8	Illustration de l'erreur en fonction de p	149
5.9	Évolution de la réactivité en regard de la masse de ^{238}Pu et de ^{242}Cm avant correction	150
5.10	Somme molaire des valences et performance de consommation des AM pour différentes stratégies d'alimentation	151
5.11	Spéctres des différents ARAMIS-A	153
5.12	Performance d'incinération et proportion de fission des différents ARAMIS-A	153
5.13	Bilan de production du curium et dégâts d'irradiation dans le réflecteur des différents ARAMIS-A	154
5.14	Rendement d'incinération et bilan de consommation des actinides des différents ARAMIS-A	155
5.15	Performance et nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération des américiums principaux des différents ARAMIS-A	156
5.16	Visualisation de la géométrie d'ARAMIS-B	158
5.17	k_{eff} en fonction de l'épaisseur de la couverture fertile pour deux versions d'ARAMIS-B	158
5.18	Visualisation de l'évolution de la matrice jacobienne d'ARAMIS-B	159
5.19	Puissance thermique dans les cellules d'ARAMIS-A et d'ARAMIS-B	160
5.20	Illustration du cycle de conversion du plutonium avec ARAMIS-B	160
5.21	Spéctres initiaux du cœur, de la couverture et du réflecteur radial pour deux configurations d'ARAMIS-B	161
6.1	Évolution de la puissance installée dans le scénario <i>Benchmark</i>	168
6.2	Évolution de la puissance installée dans le scénario <i>TerraWater</i>	168
6.3	Vue en coupe de l'assemblage REP modélisé	170
6.4	Schématisation du cycle des combustibles UNE et MOX français	171
6.5	Illustration du cycle modélisé avant hypothèses simplificatrices	171
6.6	Illustration du cycle modélisé après hypothèses simplificatrices	171
6.7	Illustration du cycle modélisé des RNR-Na pendant la phase transitoire et à l'équilibre	173
6.8	<i>Benchmark</i> – Déploiement du parc	174
6.9	<i>Benchmark</i> – Ressources	175
6.10	Bilan des entrées/sorties en Pu et en Am pour ARAMIS-A V0p	176
6.11	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-A – Déploiement du parc	177
6.12	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-A – Réserve en américium	178
6.13	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-A – Répartition des réserves en américium	178
6.14	<i>TerraWater</i> – Déploiement du parc	180
6.15	<i>TerraWater</i> +ARAMIS-A – Déploiement du parc	180
6.16	<i>TerraWater</i> +ARAMIS-A – Ressources	181
6.17	<i>TerraWater</i> +ARAMIS-A – Réserve en américium	182
6.18	Illustration du cycle du plutonium interne d'ARAMIS-B modélisé dans ISF	183
6.19	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B – Déploiement du parc	184
6.20	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B – Ressources	185
6.21	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B+ARAMIS-A – Déploiement du parc	186

6.22	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B+ARAMIS-A – Réserve en américium	186
6.23	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B+ARAMIS-A – Réserve en plutonium total	187
B - 1	<i>Benchmark</i> – Diagramme DOT (partie 1)	XVIII
B - 2	<i>Benchmark</i> – Diagramme DOT (partie 2)	XIX
B - 3	Illustration simplifiée du cycle du combustible	XX
B - 4	Évolution de l'isotopie du plutonium dans la couverture d'ARAMIS-B	XX
B - 5	<i>Benchmark</i> – Réserves en neptunium, américium et curium	XXI
B - 6	<i>TerraWater</i> – Réserves en neptunium, américium et curium	XXI
B - 7	Illustration des réacteurs présentés	XXII

Liste des tableaux

	Page	
1.1	Caractéristiques principales des différents paliers de réacteurs en France	31
1.2	Classification des déchets nucléaires et gestions proposées par l'ANDRA	35
2.1	Différences entre les sels fluorures et les sels chlorures	42
2.2	Rayons ioniques des éléments	45
2.3	Tableau des valences des éléments d'un sel chlorure avec un potentiel de -1,5V	47
2.4	Schéma d'extraction mis au point pour le projet MIMOSA	53
3.1	Caractéristiques techniques des machines de calcul utilisées pour les simulations (en juin 2025)	95
4.1	UOX et MOX usés et refroidis 5 ans	103
4.2	$N_{n,i}$ de quelques actinides d'intérêt pour différentes profondeurs de \mathcal{C}_i	108
4.3	Objectifs sur les critères d'incinération pour un régénérateur et deux incinérateurs Pu et AM .	112
4.4	Contraintes disponibles dans le code REM	115
4.5	Caractéristiques géométriques du MSFR de référence	119
4.6	Caractéristiques des sels initiaux et paramètres REM de la simulation du MSFR de référence .	120
4.7	Schéma d'extraction EVOL pour le cœur (gauche) et la couverture (droite)	121
4.8	Alimentations et contraintes dans le MSFR	121
4.9	Comparaison de grandeurs neutroniques en cœur entre différentes géométries simplifiées du MSFR de référence	127
5.1	Caractéristiques géométriques des RAPTOrs	138
5.2	Paramètres REM de la simulation des différents RAPTOrs	138
5.3	Caractéristiques des cas d'application du projet MIMOSA	139
5.4	Différentes stratégies d'alimentation et de contraintes définies pour les RAPTOr 2 m ³	140
5.5	Tableau récapitulatif des quatre simulations intervertissant les puissances totales et spécifiques	142
5.6	Vecteur isotopique des deux plutoniums considérés (en % _{mol})	143
5.7	Tableau récapitulatif des bilans matières pour les géométries 2 m ³	145
5.8	Caractéristiques géométriques des différentes versions d'ARAMIS-A	146
5.9	Paramètres REM des différentes simulations d'ARAMIS-A	147
5.10	Schéma d'extraction ISAC	148
5.11	Proportion de sel traité par <i>batch</i> , pseudopériodes et erreur relative pour quelques réacteurs d'intérêt.	149
5.12	Schémas d'alimentation et de contrainte des différents ARAMIS-A	151
5.13	Caractéristiques des différents réflecteurs étudiés dans cette section	152
5.14	Caractéristiques des différents réflecteurs étudiés dans cette section	155
5.15	Schéma d'alimentation et de contrainte d'ARAMIS-B	159
5.16	Performance d'incinération et masse de plutonium converti pour différents matériaux de ré- flecteur	161
5.17	Vecteur isotopique des plutoniums cible et produit (en % _{mol})	162
5.18	Performance d'incinération, masse de plutonium converti et qualité fissile du plutonium ex- trait pour différentes épaisseurs de la couverture	162

5.19	Performance d'incinération, masse de plutonium converti et qualité fissile du plutonium extrait pour différents temps d'extraction du plutonium	163
6.1	Caractéristiques des gestions REP utilisées dans les scénarios présentés	169
6.2	Caractéristiques simplifiées des REP historiques dans les scénarios présentés	172
6.3	<i>Benchmark</i> – Récapitulatif des inventaires des principales matières	175
6.4	Caractéristiques pour les ARAMIS-A V0p	176
6.5	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-A – Récapitulatif des inventaires des principales matières	177
6.6	<i>TerraWater</i> +ARAMIS-A – Récapitulatif des inventaires des principales matières avec écart relatif par rapport au scénario sans RSF	181
6.7	Caractéristiques pour les ARAMIS-B	183
6.8	Récapitulatif des inventaires en américium dans les différents scénarios du <i>Benchmark</i>	184
6.9	Récapitulatif de la consommation finale en uranium naturel et des inventaires finaux en plutonium et américium dans les différents scénarios du <i>Benchmark</i>	187
A - 1	Réacteurs étudiés au cours de cette thèse	XIV
A - 2	Composition atomique du B ₄ C	XIV
A - 3	Composition atomique de l'acier 316H	XIV
A - 4	Composition atomique du NiCrW	XV
A - 5	Composition atomique du MgO	XV
A - 6	Composition atomique de l'Inconel 625	XVI
A - 7	Composition atomique de l'EM10	XVI
C - 1	Mot-clefs de configuration de la classe REACTEUR	XXIV
C - 2	Mot-clefs de configuration de la classe CELLULE	XXV
C - 3	Mot-clefs de configuration de la classe UNITE_RETRAITEMENT	XXV
C - 4	Mot-clefs de configuration de la classe ALIMENTATION	XXVI
C - 5	Mot-clefs de configuration des la classes CONTRAINTE et VARIABLE	XXVI
C - 6	Mot-clefs de configuration de la classe FORME	XXVI
C - 7	Mot-clefs de configuration de la classe EVOLUTION	XXVII
C - 8	Mot-clefs de configuration de la classe INVENTAIRE	XXVIII
C - 9	Mot-clefs de configuration de la classe COMPOSITE	XXIX
C - 10	Mot-clefs de configuration des différents MT dans la classe COMPOSITE	XXX

Table des interludes

	Page
1.1 Le rapport de branchement de l' ^{242}Am	24
2.1 Les RNR-Na, un autre réacteur de IV ^e génération	60
3.1 Le calcul du k_{eff} combiné dans MCNP	76
3.2 Le pas RK4	90
4.1 Réflexions sur la pertinence de la définition d'un <i>burnup</i> adapté aux RSF	106
4.2 Calcul de $N_{n,i}$ et de $N_{p,i}$ avec une chaîne de Markov	108
4.3 Calcul des vecteurs de sensibilités	118
4.4 Calcul des cotes d'un réacteur	128
5.1 Calcul de l'erreur sur le temps de vidange	148

Table des sigles et des acronymes

A	Alcalin	50
ADEME	Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie	8
AIEA	Agence Internationale de l'Énergie Atomique	10
ALCADE	Allonger Les Campagnes pour Améliorer Durablement l'Exploitation	169
ALISIA	<i>Assessment of LIquid Salts for Innovative Applications</i>	61
AM	Actinide Mineur	24
AMR	<i>Advanced Modular Reactor</i>	34
AMSTER	<i>Actinide Molten Salt TransmutER</i>	58
An	Actinide	50
ANDRA	Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs	32
ARAMIS	<i>Advanced Reactor for Actinides Management In Salt</i>	67
ARE	<i>Aircraft Reactor Experiment</i>	10
ASNR	Autorité de Sûreté Nucléaire et de Radioprotection	74
ASTRID	<i>Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration</i>	30
AT	AlcalinoTerreux	50
BR	<i>Branching Ratio</i>	24
BU	<i>BurnUp</i>	49
BWR	<i>Boiling Water Reactor</i>	29
CANARENT	Codes d'Aides aux Nano-tasks Abrutissantes, Rébarbatives et Ennuyeuses mais Nécessaires pour le Travail	123
CANDU	<i>CANadian Deuterium Uranium</i>	29
CARAPTOR	Constructeur Avancé de RAPTOR	127
CARAPUCE	<i>Concept of an Advanced Reactor for Actinides and PlUtonium Conversion and Evolution</i>	91
CEA	Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives	10
CEREIS	Contrôleur en Évolution de la Réactivité par Extraction et Injection de Sel	92
CGM	Constructeur de Géométrie MCNP	84
Cigéo	Centre Industriel de Stockage GÉologique	34
CNPE	Centre Nucléaire de Production d'Électricité	30
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique	1
COSI	COde de Simulation	94
CP-1	<i>Chicago Pile-1</i>	10
CPY	Contrat-Programme γ	169
CRAM	<i>Chebyshev Rational Approximation Method</i>	80
CSD-V	Conteneur Standard de Déchets Vitriifiés	34
CYCLADES	CYcle Combustible Long pour Augmenter la Disponibilité par Évaluation de Sûreté	169
DI	Données d'Interface	146
dpa	Déplacements Par Atome	110
EDF	Électricité De France	33
ENDF	<i>Evaluated Nuclear Data File</i>	79
ENDURANCE	<i>EU kNowleDge hUb foR enAbling MolteN Salt ReaCtor safety development and dEployment</i>	61
EnR	Énergie Renouvelable	8

EPR	<i>Evolutionary Pressurised Reactor</i>	30
ERE	Évolution d'un Réacteur / <i>Enhanced Reactor Evolution</i>	83
EVOL	<i>Evaluation and Viability Of Liquid fuel fast reactor</i>	61
Évomat	Évolution d'un matériau	92
GALICE	Gestion avec Augmentation Limitée de l'Irradiation du Combustible en Exploitation	169
GARANCE	Gestion Avancée des REP avec Adaptation aux Nouveaux Cœurs Envisagés	169
GBII	Georges-Besse II	32
GEMMES	Gestion des Évolutions et des Modifications des Modes d'Exploitation en Sécurité	169
GFR	<i>Gas-cooled Fast Reactor</i>	61
GIF	<i>Generation IV International Forum</i>	10
GV	Générateur de Vapeur	29
HA-VL	Haute Activité à Vie Longue	34
HWGCR	<i>Heavy Water Gas Cooled Reactor</i>	29
HX	<i>Heat exchanger</i> , échangeur de chaleur	97
IJCLab	Laboratoire de physique des deux infinis Irène Joliot-Curie	61
IME	Intégration des Matrices d'Évolution / <i>Integration of Matrix for Evolution</i>	84
INES	<i>International Nuclear Event Scale</i>	10
IN2P3	Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules	10
ISAC	<i>Innovative System for Actinide Conversion</i>	62
ISF	<i>Innovative Scenarios for the Future</i>	92
k_{eff}	Coefficient de multiplication effectif	19
k_{∞}	Coefficient de multiplication infini	19
k_p	Coefficient de multiplication prompt	21
Kp	Coefficient de production (facteur de charge)	172
LANL	<i>Los Alamos National Laboratory</i>	74
LFR	<i>Lead-cooled Fast Reactor</i>	61
Ln	Lanthanide	50
LPSC	Laboratoire de Physique Subatomique & Cosmologie	61
LTM	Lecture de <i>Tally MCNP</i>	84
LWR	<i>Light Water Reactor</i>	63
MCNP	<i>Monte-Carlo N-Particles transport code</i>	74
MIMOSA	<i>Multi-recycling strategies of LWR SNF focusing on Molten Salt technology</i>	63
makxsf	<i>Make Cross-Section Files</i>	79
MOSARELA	<i>Molten Salt Reactor Life-cycle Assessment</i>	91
MOST	<i>Review of Molten Salt reactor Technology</i>	61
MOX	Mélange d'Oxydes	32
MRREP	Multi-Recyclage en REP	33
MSBR	<i>Molten Salt Breeder Reactor</i>	57
MSFR	<i>Molten Salt Fast Reactor</i>	1
MSR	<i>Molten Salt Reactor</i>	61
MSRE	<i>Molten Salt Reactor Experiment</i>	10
NAAREA	<i>Nuclear Abundant Affordable Resourceful Energy for All</i>	63
NEA	<i>Nuclear Energy Agency</i>	10
NEEDS	Nucléaire, Énergie, Environnement, Déchets, Sociéié	61
NJOY	<i>Nuclear Data Processing System</i>	79

NL	Noyaux Lourds (Actinides)	89
ORNL	<i>Oak Ridge National Laboratory</i>	10
PACEN	Programme sur l'Aval du Cycle ÉlectroNucléaire	61
pcm	Pour cent mille	19
PF	Produit de Fission	15
PIB	Produit Intérieur Brut	7
PNGMDR	Plan National de Gestion des Matières et des Déchets Radioactifs	34
PPR	Parallélépipède Rectangle	97
PWR	<i>Pressurized Water Reactor</i>	29
PYMS	<i>PYthon Molten salt Studies with SERPENT2</i>	91
Q_{fis}	Qualité fissile	143
RAPTOR	Réacteur Alimenté en Plutonium et en Transuraniens pour Orano	65
REB	Réacteur à Eau Bouillante	29
REM	Réaliser une Évolution avec MCNP / <i>Reactor Evolution with MCNP</i>	83
REMGui	<i>REM simulation results Graphical User Interface</i>	124
REP	Réacteur à Eau Pressurisée	10
RESC	Réacteur à Eau SuperCritique	61
RK4	Runge-Kutta d'ordre 4	80
RNR	Réacteur à Neutrons Rapides	60
RNR-Na	Réacteur à Neutrons Rapides à caloporteur Sodium	29
RSF	Réacteur à Sels Fondus	1
RTHT	Réacteur à Très Haute Température	60
SAMOFAR	<i>Safety Assessment of the MOLten salt FAst Reactor</i>	61
SAMOSAFER	<i>Severe Accident MOdeling and Safety Assessment for Fluid-fuel Energy Reactors</i>	61
SCWR	<i>SuperCritical Water Reactor</i>	61
SDF	Scénario Du Futur	92
SFR	<i>Sodium-cooled Fast Reactor</i>	60
SMR	<i>Small Modular Reactor</i>	34
SMURE	<i>Serpent-MCNP Utility for Reactor Evolution</i>	80
SNF	<i>Spent Nuclear Fuel</i>	63
STEP	Station de Transfert d'Énergie par Pompage	168
SUR	Simuler une Unité de Retraitement / <i>Simulation Unit for Retrieval</i>	84
Subatech	Laboratoire de physique SUBAtomique et TECHNologies associées	61
SyRE	Système pour le Recyclage et l'Exploitation	157
tep	Tonne équivalent pétrole	11
TMSR	<i>Thorium Molten Salt Reactor</i>	58
TMSR-LF1	<i>Thorium-based Molten Salt Reactor-Liquid Fuel 1</i>	10
TRISO	<i>TRidimensional ISOmetric</i>	60
TRU	TRansUranien	54
${}^{\text{app}}\text{U}$	Uranium appauvri	32
UER	Unité d'Enrichissement ou de Retraitement	92
${}^{\text{nat}}\text{U}$	Uranium naturel	32
UNE	Uranium Naturel Enrichi	32
UNGG	Uranium Naturel Graphite-Gaz	29
UOX	<i>Uranium OXide</i>	32

URE	Uranium de Retraitement Enrichi	33
URT	Uranium de ReTraitement	32
VHTR	<i>Very High Temperature Reactor</i>	60
WP	<i>Work Package</i>	63
X	Halogène	50

*I hear only what I want to hear
But I have to believe in something*
Supertramp, *A Soapbox Opera*

Introduction générale

La France a fait le choix de produire la majorité de son électricité avec de l'énergie nucléaire. Ce choix, motivé dans les années 1970 par des raisons d'indépendance énergétique, est aujourd'hui un formidable atout stratégique dans la lutte contre le dérèglement climatique. Outre la faible émission de CO_2 par kWh_e produit, cette énergie a d'autres avantages comme la faible empreinte au sol des installations industrielles, la disponibilité et la pilotabilité journalière ou encore la compétitivité économique de l'électricité produite. En outre, la filière s'inscrit dans une culture de sûreté sans cesse améliorée. Mais cela n'occulte pas certains risques tels que les tensions éventuelles sur les matières premières et l'approvisionnement en uranium, les tensions sur les chaînes logistiques et industrielles, le risque de prolifération d'armes nucléaires et la complexe gestion des matières et des déchets radioactifs, en particulier les déchets à vie longue.

La recherche sur la gestion des déchets nucléaires en France est encadrée législativement depuis 1991 avec la définition de trois axes de recherche majeurs que sont la séparation et la transmutation, le stockage en formation géologique profonde et le conditionnement en l'entreposage de longue durée en surface. Cette recherche est intimement liée à la stratégie d'évolution du parc de réacteurs français et au statut de certaines substances radioactives, en particulier le plutonium ou les actinides mineurs. La gestion du plutonium est au cœur de la stratégie française et guide les choix d'évolution du parc : son monorecyclage est mis en œuvre dans les réacteurs actuels et les futurs réacteurs visent à permettre son multirecyclage. Par conséquent, les substances dominant la radiotoxicité des déchets nucléaires sont aujourd'hui les actinides mineurs et notamment l'américium. Le plutonium n'étant pas un déchet en France, l'étude d'une stratégie de gestion supplémentaire de l'américium — et des actinides mineurs plus largement — est donc particulièrement pertinente pour participer à l'élaboration d'un cycle du combustible national plus vertueux encore.

Ce travail de thèse, réalisé au CNRS ([Centre National de la Recherche Scientifique](#)) en collaboration avec Orano, s'inscrit ainsi dans le cadre de l'analyse de l'incinération des actinides mineurs avec la technologie des Réacteurs à Sels Fondus (RSF), technologie étudiée depuis 25 ans par l'équipe MSFR (*Molten Salt Fast Reactor*) au LPSC de Grenoble et identifiée comme étant d'intérêt par le groupe Orano. En particulier, cette thèse s'intéresse aux stratégies de réduction des déchets nucléaires par le prisme de la réduction de l'inventaire en actinides mineurs, et en particulier en américium, produits par le parc de réacteurs actuels et dont la conception se focalise en premier lieu sur leur gestion du plutonium. Ces travaux s'insèrent dans le cadre du projet national ISAC, étudiant la capacité d'incinération de l'américium d'une esquisse de RSF baptisée ARAMIS-A, et du projet européen MIMOSA, évaluant les possibilités de fermeture du cycle du combustible européen au sens large (incluant également les autres actinides) en considérant des technologies de sels fondus.

Le chapitre 1 introduit le contexte énergétique mondial dans lequel se sont déroulées les trois années de cette thèse et définit des notions clefs pour l'appréhension de la suite du travail. Des éléments de physique nucléaire et de neutronique sont présentés pour les chapitres 3 et 4, puis la présentation du parc historique de réacteurs français. Enfin, une analyse plus poussée de la problématique de la thèse est exposée ainsi que les

objectifs attendus : l'incinération des actinides mineurs, et en particulier de l'américium, dans des réacteurs à sels fondus.

Le chapitre 2 complète le premier chapitre en introduisant des notions de chimie des sels fondus permettant de comprendre certains aspects du fonctionnement des RSF, au cœur des développements réalisés au cours de cette thèse. Sont aussi présentés ici les travaux originaux réalisés sur la mise à jour de différents schémas de fonctionnement de ces réacteurs pour prendre en compte une meilleure modélisation physicochimique des éléments constitutifs du sel. Il se poursuit par la présentation des réacteurs à sels fondus à combustible liquide circulant en se focalisant sur le fonctionnement général de cette technologie, l'historique des projets — français et européens — et enfin la description des concepts qui seront au cœur de ces travaux.

Le chapitre 3 explicite les outils classiquement utilisés pour les simulations neutroniques statiques et en évolution de réacteurs nucléaires. Ces outils demandent néanmoins une adaptation pour prendre en compte certaines spécificités des RSF. Ces spécificités ont conduit au développement de nouvelles fonctionnalités dans le code REM du CNRS. Ce chapitre inclut une description détaillée et originale dudit code REM puisque ce travail de thèse a nécessité une compréhension fine des sources du code pour les développements réalisés et rendus nécessaires au vu des contraintes physicochimiques et neutroniques identifiées, en plus de l'analyse de certains écarts constatés en se comparant avec d'autres codes. Enfin, ce chapitre présente les autres outils utilisés dans ce travail, notamment le code de scénarios ISF.

Le chapitre 4 s'appuie sur le troisième chapitre pour décrire en profondeur les développements réalisés au cours de cette thèse dans le code REM. Ces ajouts ont été motivés par l'observation de certaines instabilités spécifiques aux RSF incinérateurs, à la fois en amont de cette thèse et au début des travaux, et par l'identification de nouvelles contraintes relatives à la chimie du sel et à des aspects de sûreté associés. Ces nouvelles contraintes sont associées au développement de nouvelles stratégies sur l'alimentation en combustible neuf de ces réacteurs durant leur fonctionnement. Enfin, la nouvelle stabilité des simulations, couplée à l'identification de critères pour quantifier les performances d'incinération des concepts étudiés et au développement de quelques outils d'analyse poussée, a permis de poser un nouveau cadre méthodologique pour la modélisation et l'étude des RSF incinérateurs.

Le chapitre 5 présente les travaux de caractérisation de trois familles de RSF incinérateurs : RAPTOR, ARAMIS-A et une esquisse alternative nommée ARAMIS-B. Le premier est un incinérateur de transuraniens tandis que le deuxième est voué à gérer uniquement l'américium. Ces réacteurs sont simulés avec différents paramètres pour évaluer la sensibilité du concept à la géométrie, aux matériaux de structure, à la puissance thermique ou encore à la composition de l'alimentation. Ensuite, ces sensibilités sont comparées à l'aide des outils et des critères définis dans les chapitres précédents. Enfin, un troisième concept appelé ARAMIS-B est étudié : il s'agit d'un incinérateur dont le cœur est entouré d'une couverture fertile alimentée en plutonium provenant de combustible MOX usé. La première étude présentée dans ce chapitre vise à analyser la capacité de cette esquisse à redresser la qualité fissile du plutonium en fonctionnement et donc d'extraire un plutonium de qualité équivalente à celle d'un combustible MOX neuf.

Enfin, le chapitre 6 s'appuie sur l'intégration de ces RSF incinérateurs modélisés dans des scénarios de déploiement de parcs de réacteurs. Une modélisation simplifiée du parc français historique est proposée, suivie de trajectoires d'évolution d'intérêt. L'analyse de ces trajectoires, dans lesquelles s'insèrent ou non des RSF, permet de mesurer la performance d'incinération des RSF à une échelle plus macroscopique en se concentrant sur le prisme de la stabilisation de l'inventaire en américium.



Première partie

Physique, chimie et historique

Rappel que sous l'Ancien Régime, il y avait moins de CO₂ dans l'air.

Paul-Estéban Le Provošt

1

L'énergie nucléaire et la physique des réacteurs nucléaires

Sommaire

<i>Introduction du chapitre</i>	7
1.1 État des lieux de l'utilisation de l'énergie nucléaire en France et dans le monde	7
1.1.1 Une épopée mondiale de l'énergie	7
1.1.2 L'énergie nucléaire dans le monde	9
1.1.3 La France : un pays nucléaire	11
1.2 Éléments de neutronique et de physique des réacteurs nucléaires	14
1.2.1 Physique nucléaire simplifiée	14
1.2.2 Notions de neutronique	17
1.2.3 De la neutronique au combustible	22
1.3 Les réacteurs et le cycle du combustible français	29
1.3.1 Illustration du principe de fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée	29
1.3.2 Le parc français et son déploiement	29
1.3.3 Le cycle du combustible français	31
1.4 Une perspective d'incinération des déchets nucléaires	33
1.4.1 Perspectives d'évolution du parc français et du cycle du combustible associé	33
1.4.2 Les déchets nucléaires et le statut ambigu du plutonium	34
1.4.3 L'objectif de cette thèse : l'incinération des transuraniens	36
<i>Conclusion du chapitre</i>	37

Figures

1.1 Consommation d'énergie et émissions de CO ₂ à l'échelle mondiale	8
1.2 Température journalière de l'air à la surface de la Terre (jusqu'au 20 novembre 2025)	9
1.3 Taux de mortalité et émissions de gaz à effet de serre de différentes sources d'énergie	9
1.4 Frise chronologique retraçant certaines dates importantes de l'énergie nucléaire en France et dans le monde	10
1.5 <i>Log Scale</i> , webcomic	11
1.6 Production d'uranium et d'électricité d'origine nucléaire dans le monde	12
1.7 Production nette d'électricité par source d'énergie en France	13
1.8 Carte de l'Europe des intensités carbone le 19 janvier 2025	13

1.9	Table des isotopes par type de désintégration majoritaire	14
1.10	Illustration de la fission induite	15
1.11	Rendements de fission de l' ²³⁵ U et du ²³⁹ Pu en fonction du nombre de masse et de l'énergie du neutron incident provenant de la base de données JEFF 3.3	16
1.12	Nombre moyen de neutrons produits par fission en fonction de l'énergie du neutron incident	16
1.13	Illustration de la capture neutronique	16
1.14	Illustration de la diffusion élastique et inélastique	17
1.15	Sections efficaces de fission et de capture pour l' ²³⁵ U, le ²³⁹ Pu et l' ²⁴¹ Am	17
1.16	Spéctres neutroniques de différents types de réacteurs	20
1.17	Spéctre d'émission des neutrons prompts et retardés de l' ²³⁵ U et du ²³⁹ Pu	20
1.18	Effet de la température sur des résonances de diffusion élastique et de capture de l' ²³⁸ U . . .	22
1.19	Rapport entre la section efficace de fission et celle d'absorption pour des actinides d'intérêt	23
1.20	Diagramme NZ de certains actinides avec leur mode principal d'apparition et illustration des cycles de régénération	24
1.21	Rapport de branchement de l' ²⁴² Am pour plusieurs bases de données	25
1.22	Illustration d'un cycle de régénération <i>i/j</i>	26
1.23	Neutrons disponibles après régénération et prise en compte des captures	27
1.24	Principe de fonctionnement d'un REP	28
1.25	Puissance nucléaire électrogène installée en France, en Europe et dans le monde depuis 1960	30
1.26	Le parc électrogène français en 2025	31
1.27	Vue schématique du cycle du combustible REP français en 2018	32
1.28	Illustration du volume des déchets de haute activité conditionnés produits en France jusqu'en 2020	35

Tableaux

1.1	Caractéristiques principales des différents paliers de réacteurs en France	31
1.2	Classification des déchets nucléaires et gestions proposées par l'ANDRA	35

Introduction du chapitre

L'énergie électronucléaire a le double avantage d'être décarbonée et très concentrée. Mais elle a aussi l'inconvénient de produire des déchets radioactifs de faible comme de haute durée de vie, dont notamment les actinides mineurs qui dominent actuellement leur radiotoxicité à long terme. Pour réduire cet impact, la transmutation des actinides mineurs est envisagée depuis 1991 en France et la technologie des réacteurs à sels fondus pourrait être un atout pour atteindre cet objectif. La première partie de ce chapitre (1.1) présente une rapide mise en contexte énergétique et climatique du monde en retraçant l'histoire de l'énergie nucléaire et de sa place dans le monde pour enfin faire un zoom sur la France. Ensuite, une deuxième partie (1.2) introduit quelques notions nécessaires de physique nucléaire et de neutronique en présentant dans un premier temps différentes réactions nucléaires, des notions d'interaction neutron-matière ainsi que la notion de flux neutronique et de transport de neutrons, puis, dans un second temps, la notion de noyaux fissiles, fertiles, de cycles du combustible et le processus de formation des actinides mineurs sous flux. Une troisième partie (1.3) vient dégrossir l'échelle pour parler des réacteurs nucléaires et du cycle du combustible associé, en particulier en France. Enfin, une dernière partie (1.4) expose les perspectives actualisées d'évolution du parc français, réacteurs et cycle, et présente le cadre dans lequel s'insère cette thèse de doctorat ainsi que ses objectifs : l'incinération des actinides mineurs — en particulier l'américium — dans des réacteurs à sels fondus en complémentarité ou en substitution de la gestion du plutonium dans des réacteurs à neutrons rapides.

1.1 État des lieux de l'utilisation de l'énergie nucléaire en France et dans le monde

1.1.1 Une épopée mondiale de l'énergie

L'énergie peut être définie comme étant la capacité d'un système (un être humain, une machine, etc.) à pouvoir transformer et modifier l'état d'un autre système (son environnement ou une autre machine). L'humanité n'a eu de cesse d'utiliser l'énergie à sa disposition pour transformer son environnement naturel, cette énergie était fournie pendant des millénaires par le Soleil, la biomasse (plantes et animaux), le vent et l'eau. Il est possible de faire un petit bilan simple de l'évolution de l'énergie E consommée au niveau mondial avec les deux produits en croix montrés dans l'équation (1.1) [1] :

$$E = \frac{E}{\text{PIB}} \times \frac{\text{PIB}}{N} \times N \quad (1.1)$$

N représente le nombre d'habitants, $\frac{\text{PIB}}{N}$ s'interprète comme la mesure de la transformation effective par habitant (par la production de systèmes ou par le changement de ceux-ci) et enfin $\frac{E}{\text{PIB}}$ est l'intensité énergétique, soit la quantité d'énergie nécessaire pour appliquer une unité de transformation. L'intensité énergétique — dont le maximum a probablement été atteint entre la fin du XIX^e et le début du XX^e siècle [2] — le PIB (Produit Intérieur Brut) par habitant et le nombre d'êtres humains sur Terre — qui, de manière exponentielle, est passé de 1 milliard autour de 1800 à 9 milliards en 2022 — n'ont cessé de croître au niveau mondial au gré des révolutions successives, notamment industrielles. Ces termes croissants injectés dans la formule (1.1) aboutissent à la courbe présentée dans la figure 1.1a.

Quelques remarques sont intéressantes :

- tandis que la population mondiale est multipliée par 9 durant la période 1800–2022, l'énergie consommée est multipliée par 32 ;
- il est possible d'identifier quatre dates remarquables associées à des événements historiques : les trois

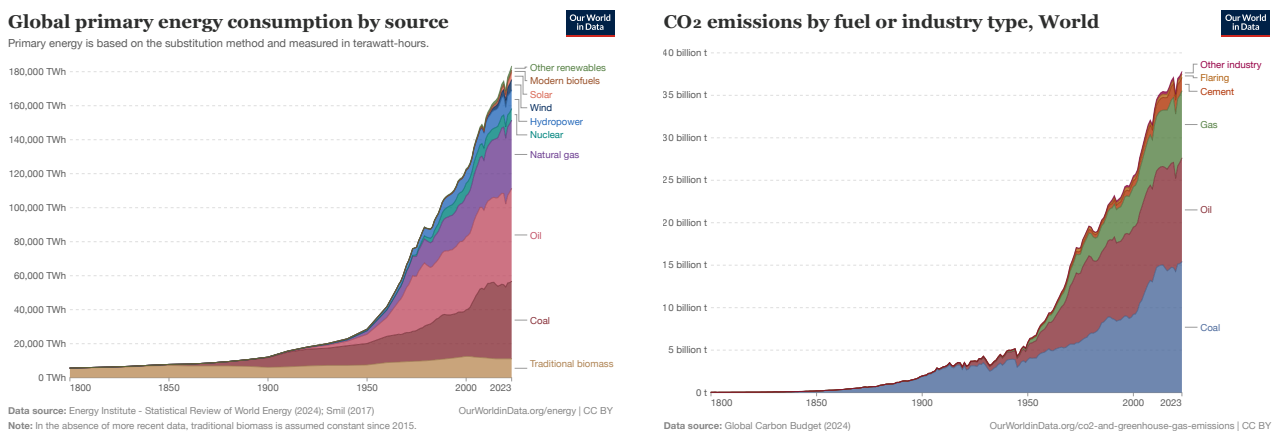
chocs pétroliers de respectivement 1973 (guerre du Kippour), 1979 (révolution iranienne) et 2008 (crise des *subprimes*) ainsi que la pandémie de Covid-19 en 2020 ;

- La biomasse traditionnelle est l'énergie primaire principale jusqu'en 1900 et a seulement doublé entre 1900 et 2000.

En 2023, plus de 80 % de l'énergie primaire consommée dans le monde est fortement émettrice en CO₂. Il est possible de multiplier les deux termes de l'équation (1.1) par le contenu en CO₂ de l'énergie $\frac{CO_2}{E}$ pour donner l'équation (1.2), dite équation de Kaya.

$$CO_2 = \frac{CO_2}{E} \times \frac{E}{PIB} \times \frac{PIB}{N} \times N \quad (1.2)$$

Ce qui donne en application des énergies combustibles présentes figure 1.1a et leur contenu respectif en CO₂ sur la figure 1.1b.



(a) Consommation mondiale d'énergie primaire par source depuis 1800 [3]

(b) Émissions mondiales de CO₂ par combustible ou industrie depuis 1800 [4]

FIGURE 1.1 – Consommation d'énergie et émissions de CO₂ à l'échelle mondiale

Ainsi, durant la période 1800–2022, les émissions mondiales annuelles de CO₂ ont augmenté de plus d'un facteur 1000. Cette augmentation vive d'émissions de gaz à effet de serre dans l'atmosphère — dont le CO₂ est le principal sans être l'unique responsable — a eu pour conséquence une augmentation impressionnante de la température moyenne à la surface du globe et le déclenchement d'une crise climatique inhérente à ces profonds changements sans précédent. La figure 1.2 montre la température journalière de l'air à la surface de la Terre entre le 1^{er} janvier 1940 et le 20 novembre 2025 en mettant en évidence la période durant laquelle cette thèse de doctorat a eu lieu, soit du 20 octobre 2022 à la fin 2025.

Lors du deuxième jour de la thèse, le record du 21 octobre le plus chaud jamais mesuré a été battu. Record de nouveau battu l'année suivante, en 2023. Chaque année, de nouveaux records s'enchaînent et tombent les uns après les autres.

Certaines sources d'énergie sont plus vertueuses en termes d'émissions de gaz à effet de serre que le charbon, le gaz ou le pétrole. Les énergies renouvelables (EnR) comme l'énergie solaire, l'énergie éolienne et enfin les énergies hydrauliques et hydroélectriques en font partie ainsi que l'énergie nucléaire [7]. La figure 1.3 montre les émissions moyennes de gaz à effet de serre pour la production d'un GWh électrique (GWh_e) de différentes sources d'énergie avec, en parallèle, leur taux de mortalité dû aux accidents et à la pollution de l'air.

L'électricité d'origine nucléaire est estimée au niveau mondial à 6 g de CO₂ équivalent par kWh mais cette estimation peut évoluer en fonction des pays. Dans certains pays comme les États-Unis d'Amérique ou la Chine, cette estimation peut monter jusqu'à 12 g/kWh [9]. En France, l'ADEME (Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie) confirme ce chiffre de 6 g/kWh [10], mais des estimations au moins aussi

pertinentes arrivent à une borne inférieure de 3,7 g/kWh [11]. Cette seconde estimation prend en compte l'alimentation des opérations du cycle du combustible français par l'électricité bas-carbone qu'elles permettent de générer.

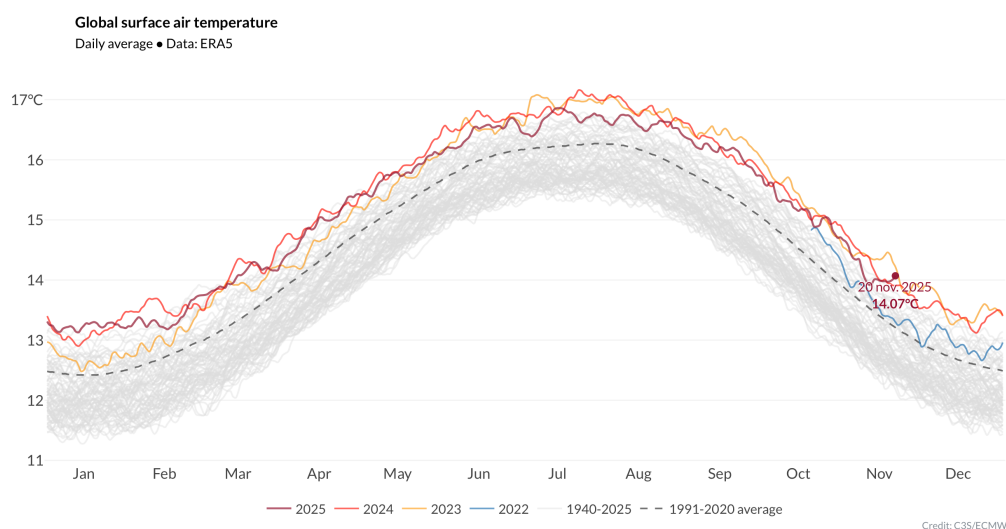


FIGURE 1.2 – Température journalière de l'air à la surface de la Terre (jusqu'au 20 novembre 2025) [5] via [6]

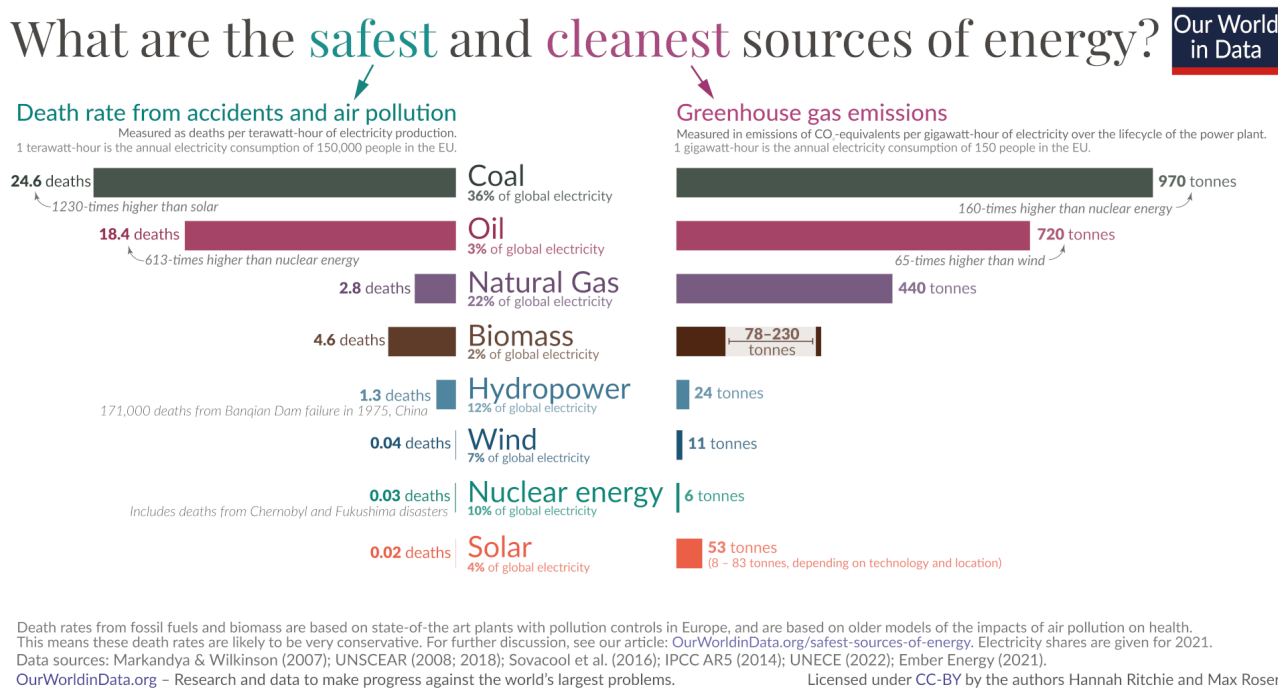


FIGURE 1.3 – Taux de mortalité et émissions de gaz à effet de serre de différentes sources d'énergie [8]

1.1.2 L'énergie nucléaire dans le monde

Dernière dans l'ordre d'apparition des différentes formes d'énergie au cours de l'histoire, l'énergie nucléaire a émergé il y a moins d'un siècle. La figure 1.4 indique quelques dates clés de cette énergie à l'échelle française (en bleu) et au niveau mondial (en rouge). Sont présentes également à titre d'indication historique les deux guerres mondiales (Gm), les trois chocs pétroliers évoqués précédemment (■) ainsi que la pandémie de Covid-19 (🦠).

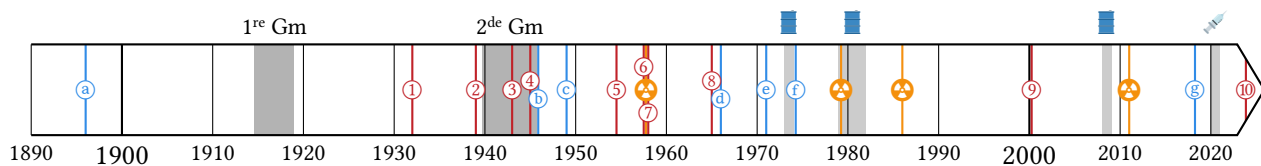


FIGURE 1.4 – Frise chronologique retraçant certaines dates importantes de l'énergie nucléaire en France et dans le monde

Les dates clés sont [12] :

- Ⓐ 1896 : Henri Becquerel découvre la radioactivité ;
- ① 1932 : James Chadwick découvre le neutron ;
- ② Décembre 1938 : Lise Meitner et Otto Han découvrent et expliquent la fission de l' ^{235}U ;
- ③ 2 décembre 1942 : la *Chicago Pile-1* (CP-1) d'Enrico Fermi diverge à Chicago ;
- ④ 16 juillet 1945 : la première bombe atomique de l'histoire explose dans le cadre de l'essai Trinity ;
- Ⓑ Octobre 1945 : le CEA (Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives) est créé en France ;
- Ⓒ 15 décembre 1948 : Zoé, la première pile atomique française, diverge au fort de Châtillon ;
- ⑤ Juin 1954 : la première centrale nucléaire est mise en service à Obninsk en RSFS¹ de Russie ;
- ⑤ 8–12 novembre 1954 : l'ARE (*Aircraft Reactor Experiment*), le premier RSF de l'histoire, fonctionne à l'ORNL (*Oak Ridge National Laboratory*) (cf. section 2.3.1.1) ;
- ⑥ Juillet 1957 : l'AIEA (Agence Internationale de l'Énergie Atomique) est créée à Vienne en Autriche ;
- ☢ 29 septembre 1957 : la première catastrophe nucléaire de l'histoire, classée au niveau 6 sur l'échelle INES (*International Nuclear Event Scale*), a lieu à Kyshtym en RSFS de Russie ;
- ⑦ 2 décembre 1957 : le premier REP (Réacteur à Eau Pressurisée) est mis en service à Shippingport aux États-Unis ;
- ⑦ 20 décembre 1957 : la NEA (*Nuclear Energy Agency*) est créée à Paris ;
- ⑧ 1965 : le MSRE (*Molten Salt Reactor Experiment*), le deuxième RSF de l'histoire, diverge à l'ORNL (cf. section 2.3.1.2) ;
- Ⓓ 18 octobre 1966 : le premier REP électrogène civil français diverge à Chooz ;
- Ⓔ 14 avril 1971 : l'IN2P3 (Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules) est créée ;
- Ⓕ 6 mars 1974 : le Premier ministre Pierre Messmer présente le plan qui portera son nom ;
- ☢ 28 mars 1979 : le cœur du réacteur numéro 2 de la centrale nucléaire de Three Mile Island aux États-Unis fond partiellement et entraîne un accident nucléaire classé au niveau 5 sur l'échelle INES ;
- ☢ 26 avril 1986 : le réacteur numéro 4 de la centrale nucléaire de Chornobyl² en RSS³ d'Ukraine explose entraînant une catastrophe nucléaire majeure classée au niveau 7, le maximal, sur l'échelle INES ;
- ⑨ Janvier 2000 : le GIF (Forum International Génération IV) se réunit pour la première fois aux États-Unis ;
- ☢ 11 mars 2011 : la fusion des cœurs des réacteurs numéro 1, 2 et 3 de la centrale nucléaire de Fukushima Daiichi entraîne la deuxième catastrophe nucléaire de l'histoire classée au niveau 7 sur l'échelle INES ;
- Ⓖ 9 mars 2018 : l'association des Voix du Nucléaire est créée [13] ;
- ⑩ 11 octobre 2023 : le TMSR-LF1 (*Thorium-based Molten Salt Reactor-Liquid Fuel 1*), le troisième RSF de l'histoire, diverge en Chine (cf. section 2.3.3.3).

1. République socialiste fédérative soviétique

2. Transcription internationale du nom ukrainien Чорнобиль, *Chornobyl*.

3. République socialiste soviétique

Il existe une unité d'énergie appelée la tonne équivalent pétrole (**tep**). Cette unité désigne l'ordre de grandeur du pouvoir calorifique d'une tonne de pétrole et est définie comme étant égale à 41,868 GJ ou encore 11 630 kWh. Il est possible d'estimer l'ordre de grandeur du pouvoir calorifique d'une tonne d'uranium dans cette même unité d'énergie. En prenant l'hypothèse que la masse molaire de l'uranium M_U est de 238 g/mol – avec N_A le nombre d'Avogadro – et que l'énergie produite par une fission ε est de 203 MeV, une tonne m_{1t} d'uranium naturel dont seulement 0,7 % des atomes fissionnerait⁴ produirait l'énergie calculée par la formule (1.3) :

$$\begin{aligned}
 E &= 0,007 \frac{m_{1t} N_A \varepsilon}{M_U} \\
 &= 575\,278,1 \text{ GJ} \\
 &= 13\,740,3 \text{ tep}
 \end{aligned}
 \tag{1.3}$$

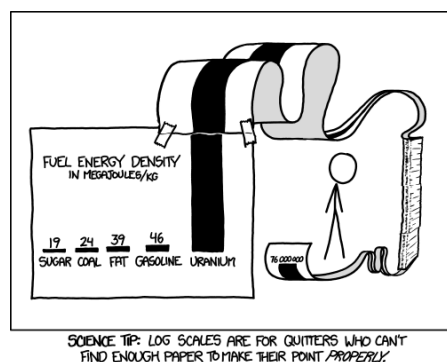


FIGURE 1.5 – Log Scale, webcomic [14]

Cette valeur de 13 740 tep peut être considérée comme une borne inférieure étant donné qu'elle considère la fission seule de l' ^{235}U dans de l'uranium naturel sans régénération. Ainsi, une tonne d'uranium hypothétiquement utilisée à 100 % (par enrichissement en ^{235}U ou par régénération) aurait une énergie théorique de 1 962 897 tep. Cet écart impressionnant en termes d'ordre de grandeur est humoristiquement illustré par la figure 1.5.

L'énergie nucléaire fait aujourd'hui intervenir des acteurs présents sur tous les continents. Par ailleurs, les pays producteurs d'uranium (figure 1.6a) ne sont pas les principaux pays consommateurs (figure 1.6b). Ainsi, les pays produisant de l'électricité d'origine nucléaire sont dans une grande majorité présents au nord de la ligne Brandt⁵ avec comme contre-exemples notables, la Chine, l'Inde, le Pakistan, le Brésil et le Mexique [15].

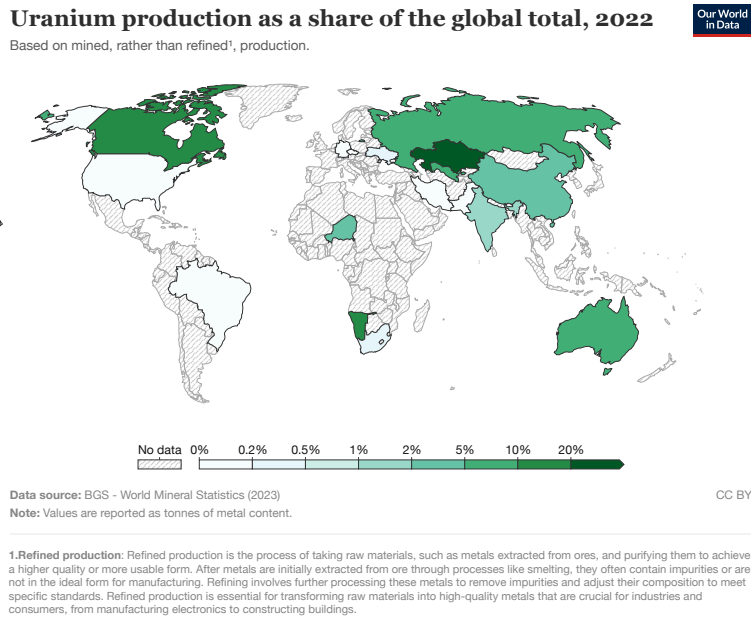
La figure 1.6b fait ressortir quatre pays ayant une production d'électricité d'origine nucléaire élevée durant l'année 2023 : la Russie (avec 217,47 TWh_e), la France (335,65 TWh_e), la Chine (434,72 TWh_e) et enfin les États-Unis (775,35 TWh_e). La France se démarque par la proportion élevée que cette source d'énergie représente dans son mix électrique.

1.1.3 La France : un pays nucléaire

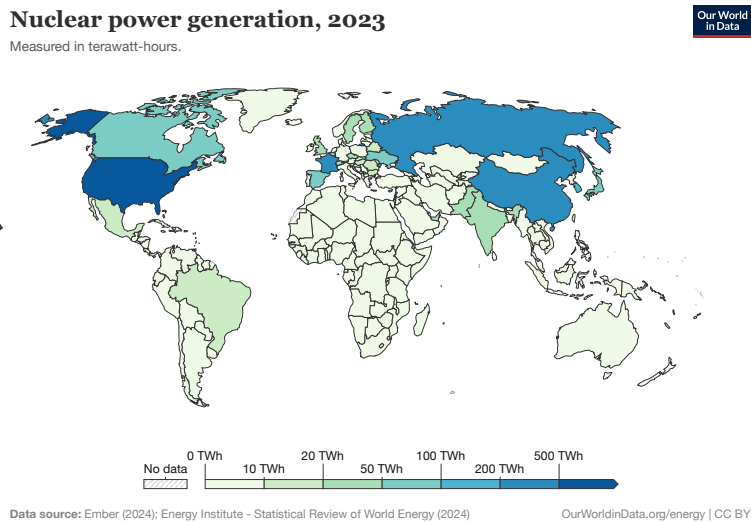
La France s'illustre comme étant une exception dans le paysage des pays utilisant l'énergie nucléaire pour leur production d'électricité en ayant pris la décision d'en faire son outil de production principal. Ainsi, la figure 1.7 montre la production nette d'électricité par source depuis 1970 et permet de remarquer qu'à partir de la fin des années 1970 et de l'annonce du plan Messmer, la production d'origine nucléaire a non seulement augmenté en proportion, mais également en valeur absolue pour se stabiliser autour de 70 % pour 400 TWh_e dans les années 2000. Il est possible de remarquer une légère baisse en 2008 (crise pétrolière), en 2020 (pandémie de Covid-19) et en 2022 (décalage de maintenance sur le parc et mise en évidence du phénomène de corrosion sous contrainte menant à l'arrêt temporaire de nombreux réacteurs). En 2024, la production nucléaire était de l'ordre de 361,7 TWh_e – soit 67,3 % du mix électrique français [17]. Le parc électronucléaire français est présenté dans la section 1.3.2.

4. L'uranium naturel est composé de 0,72 % d' ^{235}U .

5. Aussi appelée « limite Nord/Sud »



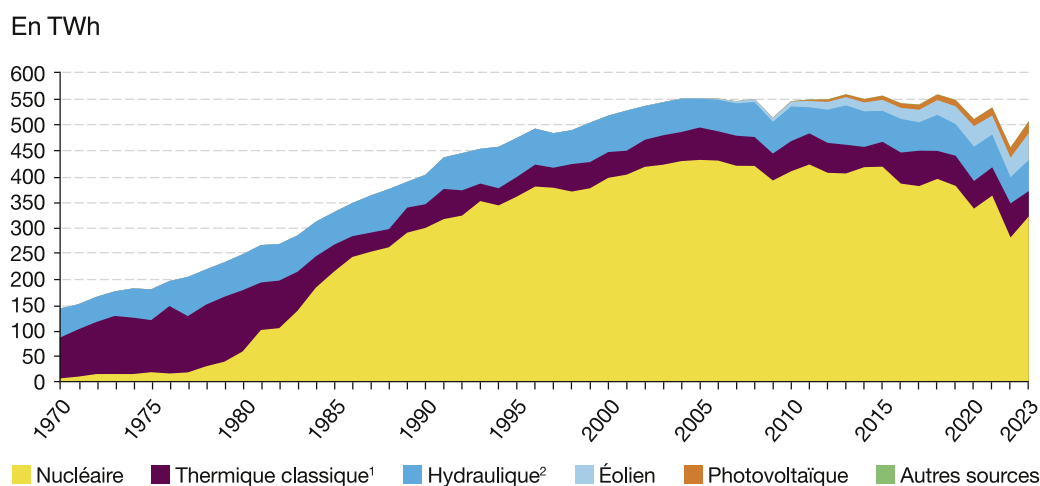
(a) Proportion de la production d'uranium en 2022 [16]



(b) Production d'électricité d'origine nucléaire en 2023 [8]

FIGURE 1.6 – Production d'uranium et d'électricité d'origine nucléaire dans le monde

Le lancement de la filière nucléaire au cours des années 1970, motivé initialement pour assurer l'indépendance énergétique du pays, a permis de manière opportune à la France d'amorcer une transition décarbonée de sa production d'électricité plusieurs décennies avant que cela ne devienne un enjeu politique pour de nombreux autres pays. La figure 1.8 montre une capture d'écran du site internet Electricity Maps [19] représentant l'intensité carbone de la production électrique de nombreux pays européens durant l'un des jours les plus froids de l'hiver 2024–2025. La faible intensité carbone de la production française est permise grâce à la forte proportion de nucléaire dans le mix électrique ce jour-là (visible sur la partie gauche de l'interface). Les seuls pays arrivant à être plus vertueux ce jour-là en Europe sont la Norvège et la Suède qui profitent de grandes installations hydrauliques. Il faut cependant prendre en compte la différence entre la quantité d'énergie produite par ces différents pays, la France produisant plus de trois fois l'énergie des pays scandinaves avec 1860 GWh_e contre respectivement 570 et 510 GWh_e pour la Norvège et la Suède.



¹ Thermique à combustibles fossiles (charbon, fioul, gaz naturel), biomasse ou déchets.

² Y compris énergie marémotrice.

Champ : jusqu'à l'année 2010 incluse, le périmètre géographique est la France métropolitaine. À partir de 2011, il inclut en outre les cinq DROM.

FIGURE 1.7 – Production nette d'électricité par source d'énergie en France [18]

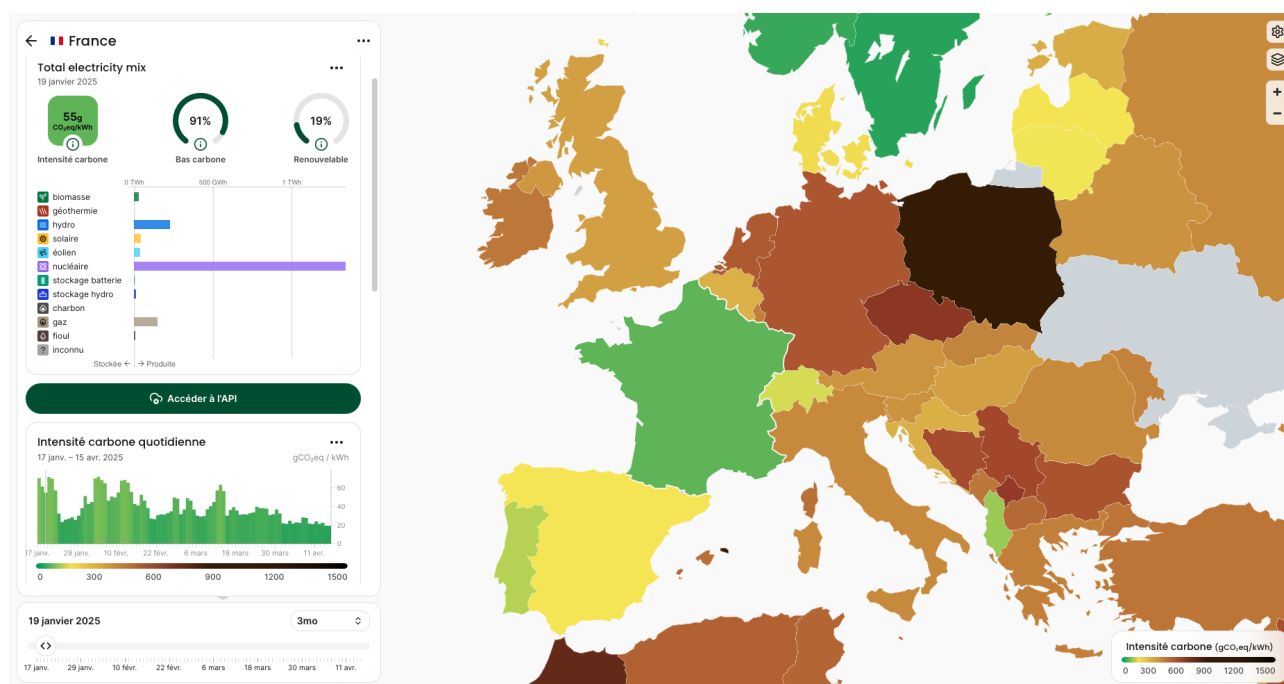


FIGURE 1.8 – Carte de l'Europe des intensités carbone le 19 janvier 2025 [19]

À retenir (1.1)

Dans un monde de plus en plus gourmand en énergie – aujourd'hui majoritairement carbonée – la production d'électricité d'origine nucléaire permet de minimiser les émissions de CO₂. Cette énergie est la principale source d'électricité en France qui, après avoir misé sur cette énergie dès les années 1970, connaît une relance soutenue par des décisions politiques ambitieuses tournées vers l'avenir.

1.2 Éléments de neutronique et de physique des réacteurs nucléaires

1.2.1 Physique nucléaire simplifiée

1.2.1.1 Isotopes, isobares et isomères

Le noyau d'un atome est constitué de protons et de neutrons. L'élément chimique constitutif de l'atome est représenté par son symbole chimique X et est déterminé par le nombre Z de protons qu'il possède, appelé numéro atomique. En outre, le noyau comporte N neutrons et possède donc un nombre de masse $A = Z + N$ égal au nombre de nucléons qui le compose et correspondant en bonne approximation à la masse molaire de l'élément exprimée en gramme. Le noyau atomique est représenté par les symboles montrés dans la formule (1.4).

$${}^A_Z X_N \quad \text{ou} \quad {}^A_Z X \quad \text{ou} \quad {}^A X \quad (1.4)$$

Des appellations sont utilisées pour comparer des isotopes :

- les **isotopes** : des noyaux possédant le même numéro atomique Z – même élément chimique – mais des nombres de masse A différents, exemple l' ${}^{235}_{92}\text{U}_{143}$ et l' ${}^{238}_{92}\text{U}_{146}$;
- les **isobares** : des noyaux possédant le même nombre de masse A , comme le ${}^{241}_{94}\text{Pu}$ et l' ${}^{241}_{95}\text{Am}$;
- les **isomères** : des isotopes possédant des états énergétiques différents et donc des comportements différents. Les versions excitées de ces noyaux sont appelées méta-stables et notées avec un « m » comme l' ${}^{242m}\text{Am}$ qui est la version méta-stable de l' ${}^{242}\text{Am}$.

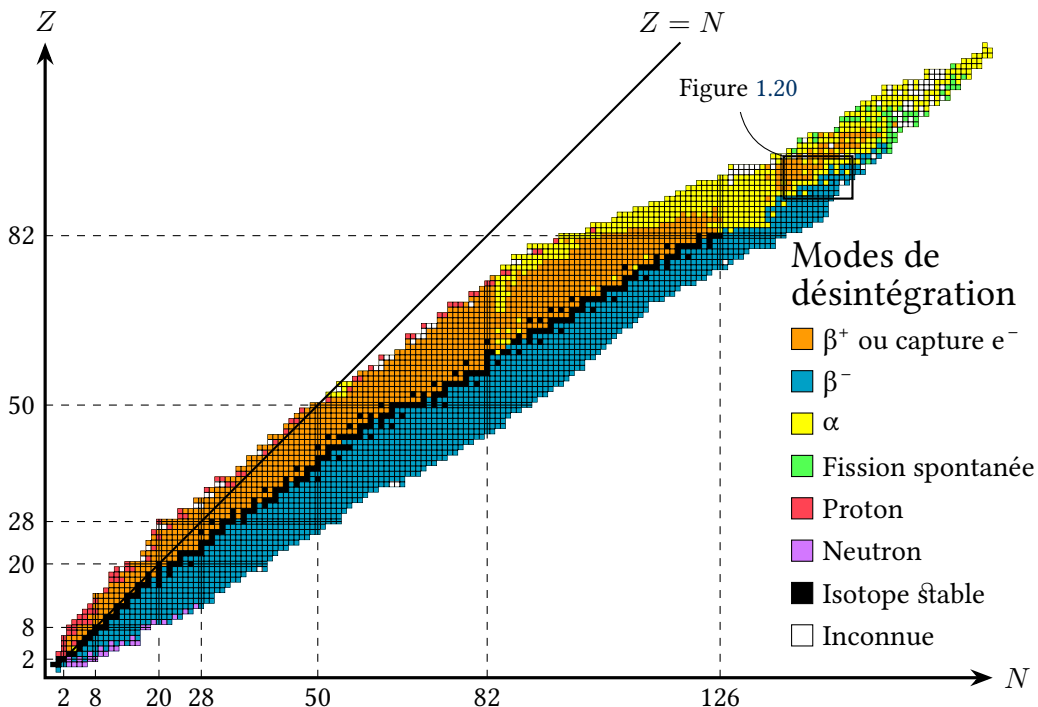


FIGURE 1.9 – Table des isotopes par type de désintégration majoritaire (données de [20, 21], inspirée de [22])

6. Qu'il est nécessaire de ne pas confondre avec le symbole X représentant les halogènes

Suivant leur A et leur Z , et afin de s'approcher ou d'atteindre la stabilité, plusieurs modes de désintégrations, libérant de l'énergie, vont se manifester :

- lorsqu'un noyau possède trop de protons, une désintégration β^+ (en orange) va en convertir un en neutron. Cette désintégration peut également se produire par la capture d'un électron par un proton, devenant ainsi un neutron. Le noyau peut aussi émettre directement un proton (en rouge) dans certains cas ;
- lorsqu'un noyau possède à l'inverse trop de neutrons, une désintégration β^- (en bleu) va en convertir un en proton. Le noyau peut également émettre directement un neutron (en rose) dans certains cas ;
- à partir d'une certaine masse, le noyau peut produire une désintégration α (en jaune) se traduisant par l'émission d'un noyau d' ^4He et permettant de diminuer son nombre de masse de deux protons et de deux neutrons d'un seul coup ;
- enfin, pour les très gros noyaux ($Z^2/A \geq 45$) parmi lesquels l'émission d'une particule α n'est plus suffisante, un phénomène de fission spontanée (en vert) peut se manifester.

La fission de noyaux lourds peut aussi être induite par une absorption neutronique.

1.2.1.2 Zoom sur trois réactions nucléaires majoritaires

Lorsqu'un noyau lourd se déforme au point de faire prédominer l'interaction coulombienne répulsive par rapport à l'interaction forte attractive, il se produit une **fission** [23]. Cette fission peut être spontanée dans le cas de noyaux suffisamment gros (représentés en vert dans la figure 1.9). Mais cette fission peut également être induite par l'absorption d'une particule, comme par exemple un neutron. La formule (1.5) montre un exemple d'équation bilan de l'absorption d'un neutron par un noyau d' ^{235}U produisant deux produits de fission (PF), deux neutrons ainsi que des rayons gammas et des neutrinos. Cette fission peut se noter « $^{235}\text{U}(n, f)$ » dans certains contextes et la figure 1.10 illustre l'exemple de l'équation (1.5).

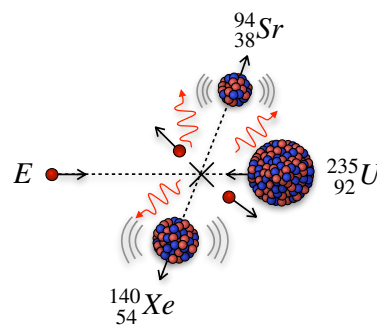
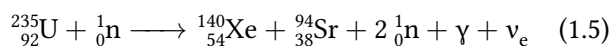


FIGURE 1.10 – Illustration de la fission induite

Il existe plusieurs centaines de fragments de fission possibles pour un noyau. La probabilité de leur formation dépend de l'énergie du neutron incident comme le montre la figure 1.11 avec les rendements de fission de l' ^{235}U et du ^{239}Pu en fonction du nombre de masse pour respectivement trois et deux énergies de neutron. Les fissions sont majoritairement asymétriques et les rendements symétriques, événements plus rares, sont aujourd'hui mal connus.

Le nombre moyen de neutrons produits par fission, noté $\nu(E)$ ⁷, dépend de l'isotope considéré et de l'énergie du neutron incident. La figure 1.12 trace ce $\nu(E)$ pour l' ^{235}U , le ^{239}Pu et l' ^{242m}Am . Lorsque ce nombre est moyenné sur l'ensemble des énergies des neutrons d'un réacteur, il est noté $\bar{\nu}$ et appelé « nubar. »

7. À ne pas confondre avec le symbole du neutrino ν_e

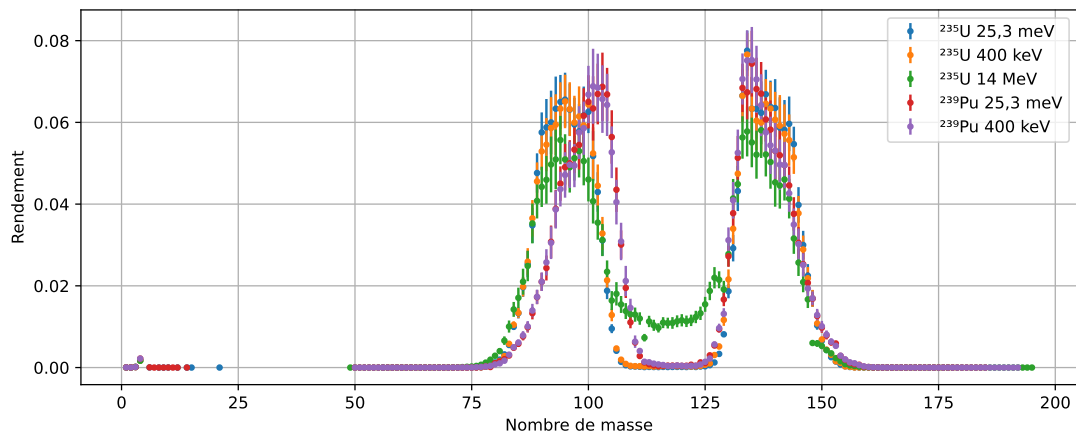


FIGURE 1.11 – Rendements de fission de l' ^{235}U et du ^{239}Pu en fonction du nombre de masse et de l'énergie du neutron incident provenant de la base de données JEFF 3.3

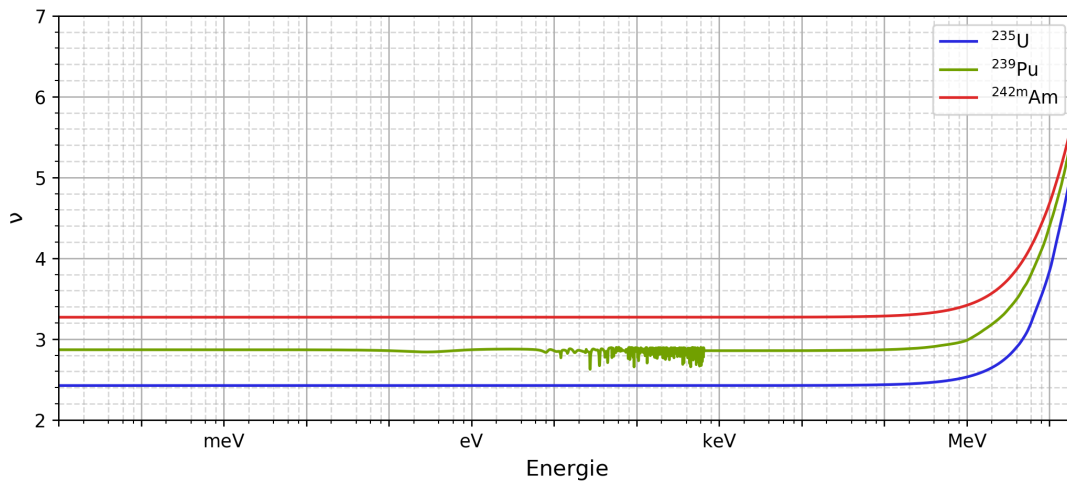


FIGURE 1.12 – Nombre de neutrons moyens produits par fission en fonction de l'énergie du neutron incident (base de données JEFF-3.3)

Lorsqu'un noyau fait une absorption sans émettre de neutron, il s'agit d'une **capture**. Le noyau résultant d'une capture reste dans un état excité et se désintègre en cédant son énergie généralement sous la forme d'un rayonnement gamma, cf. équation (1.6). Cette capture, dite radiative, peut également se noter « $^{238}\text{U}(n, \gamma)^{239}\text{U}$ » et est illustrée par la figure 1.13.

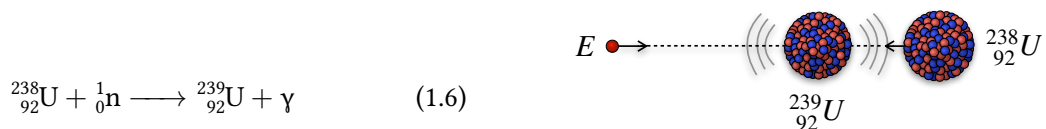


FIGURE 1.13 – Illustration de la capture neutronique

Il existe de nombreuses autres réactions d'absorption moins courantes :

- émission de plusieurs neutrons (n, 2n), (n, 3n), (n, xn) ;
- émission d'une particule chargée comme un alpha (n, α), un proton (n, p), un noyau de tritium (n, t), etc. ;
- des combinaisons comme par exemple (n, nt2 α) ou encore (n, 3np).

Enfin, lorsque l'interaction entre le noyau et le neutron incident est simplement un échange d'énergie dans le référentiel du laboratoire, il s'agit d'une **diffusion** — aussi appelée *scattering* par emprunt. Il existe deux catégories de diffusion : la diffusion élastique (figure 1.14a), notée (n, n) et dans laquelle l'échange d'énergie est purement cinétique, et résultant en une conservation de l'énergie du neutron dans le centre de masse ; et la diffusion inélastique (figure 1.14b), notée (n, n') et dans laquelle une partie de l'énergie cinétique du neutron va être transmise comme énergie potentielle au noyau.

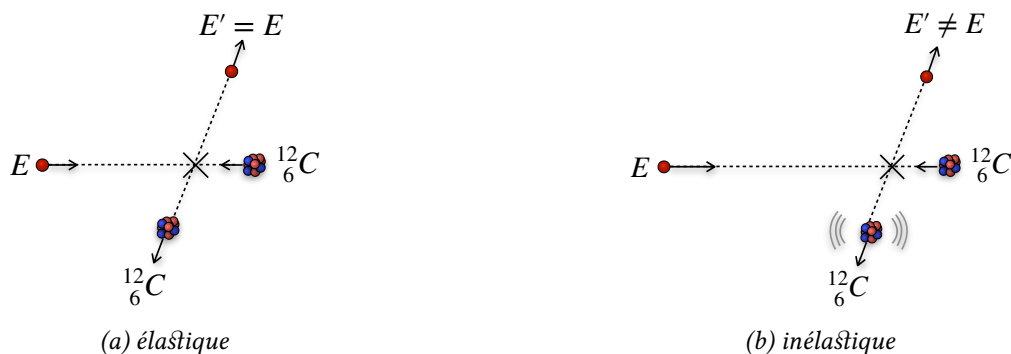


FIGURE 1.14 – Illustration de la diffusion (dans le centre de masse)

La diffusion joue un rôle essentiel dans la physique des réacteurs puisqu'elle permet de faire perdre de l'énergie aux neutrons ainsi que leur diffusion dans les matériaux.

1.2.2 Notions de neutronique

1.2.2.1 Interactions neutron-matière : les sections efficaces

Lors de l'interaction entre un neutron incident et de la matière, plusieurs réactions r peuvent avoir lieu : de la diffusion, une capture, une fission. Un exercice de pensée consistant à se placer du point de vue du neutron incident permet de visualiser le noyau avec lequel il va potentiellement interagir comme étant une surface apparente qu'il sera possible — ou non — d'atteindre. Cette surface apparente, mesurant la probabilité avec laquelle l'interaction et la réaction entre le neutron incident et le noyau peuvent avoir lieu, s'appelle une section efficace microscopique. Cette section efficace dépend de l'énergie E du neutron incident et est exprimée en barn, un barn correspondant à une surface de 10^{-24} cm². La figure 1.15 montre, en guise d'exemple, quelques sections efficaces de fission et de capture pour trois isotopes d'intérêt.

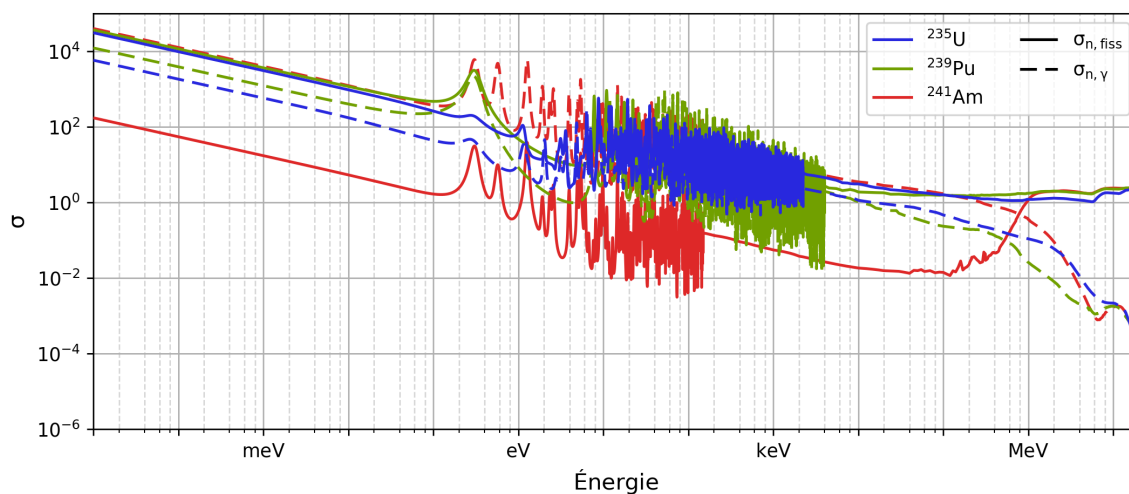


FIGURE 1.15 – Sections efficaces de fission et de capture pour l' ^{235}U , le ^{239}Pu et l' ^{241}Am

La section efficace microscopique est usuellement notée avec la lettre grecque σ . La figure 1.15 permet de bien visualiser les trois zones énergétiques des neutrons :

- la zone « $1/v$ », en dessous de l'électronvolt (eV) ou de la centaine de meV, dans laquelle les sections efficaces sont inversement proportionnelles à la vitesse des neutrons. Cette zone énergétique, dans laquelle l'énergie est proche de celle correspondant à l'agitation thermique des atomes du milieu, et appelée **thermique**;
- la zone résonnante, entre l'eV et quelques keV, caractérisée par l'apparition de pics de résonances — parfois appelés « forêt de résonances » pour certains noyaux — et chevauchant la zone d'énergie **épi-thermique**;
- le *continuum*, au dessus du keV et précédé par la zone non résolue, dans lequel les sections efficaces diminuent jusqu'à l'ordre du barn. Cette zone est corrélée avec la zone énergétique **rapide**.

La formule (1.7) regroupe toutes les interactions présentées plus haut.

$$\underbrace{\sigma_{\text{tot}}}_{\text{total}} = \underbrace{\sigma_s}_{\text{scattering}} + \underbrace{\sigma_a}_{\text{absorption}} = \underbrace{\sigma_{\text{el}}}_{\text{élastique}} + \underbrace{\sigma_{\text{in}}}_{\text{inélastique}} + \underbrace{\sigma_\gamma}_{\text{capture}} + \underbrace{\sigma_f}_{\text{fission}} + \dots \quad (1.7)$$

La section efficace macroscopique, notée avec Σ , est le produit entre la section efficace microscopique et la densité N de noyaux cibles comme indiqué dans la formule (1.8). Elle s'exprime ainsi en cm^{-1} .

$$\Sigma_r(\vec{r}, E) = \sigma_r(E)N(\vec{r}) \quad (1.8)$$

1.2.2.2 Flux neutronique et taux de réaction

Le flux neutronique est une mesure de la vitesse caractéristique des neutrons se déplaçant au sein d'un matériau. Il peut se définir avec la vitesse v des neutrons et leur densité comme le montre la formule (1.9). Le flux neutronique scalaire monoénergétique ϕ est exprimé en $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$. La formule (1.9) montre suite deux grandeurs couramment utilisées que sont le flux scalaire $\phi(E)$ et le flux angulaire ψ .

$$\begin{aligned} \phi(\vec{r}, t) &= vN(\vec{r}, t) \\ &= \int_0^{+\infty} dE' \phi(\vec{r}, E', t) \\ &= \int_0^{+\infty} dE' \iint_{4\pi} d^2\vec{\Omega}' \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) \end{aligned} \quad (1.9)$$

Une fois le flux neutronique défini et connu dans un système, il est possible de définir des **taux de réaction** en intégrant ce dernier avec les sections efficaces de ladite réaction. La formule (1.10) montre le calcul d'un taux de réaction pour une réaction r quelconque. Les taux de réaction intégrés sur un volume sont traditionnellement notés $\langle \Sigma_r \phi \rangle$ et, suivant la formule (1.8), il est possible de définir un taux de réaction volumique $\langle \sigma_r \phi \rangle$ exprimé en $\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$, formule (1.11).

$$\langle \Sigma_r \phi \rangle = \int_0^{+\infty} dE' \iint_{4\pi} d^2\vec{\Omega}' \Sigma_r(E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}) \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) \quad (1.10)$$

$$\langle \sigma_r \phi \rangle = \iiint_V d^3\vec{r}' \langle \Sigma_r \phi \rangle \quad (1.11)$$

Les taux de réaction permettent de déterminer comment vont évoluer les matériaux dans un système grâce aux équations de Bateman (1.12).

$$\frac{dN_i}{dt} = \underbrace{\sum_{j \neq i} (\langle \sigma_{j \rightarrow i} \phi \rangle + \lambda_{j \rightarrow i}) N_j(t)}_{\text{Termes d'apparition}} - \underbrace{\left(\sum_{j \neq i} \langle \sigma_{i \rightarrow j} \phi \rangle + \lambda_i \right) N_i(t)}_{\text{Termes de disparition}} \quad (1.12)$$

Ces équations traduisent la variation d'un isotope i par le bilan entre ses apparitions – par réaction ou décroissance d'un isotope j donnant i , notée $\lambda_{j \rightarrow i}$ – et ses disparitions – par réaction ou décroissance de période radioactive λ_i .

1.2.2.3 Réactivité et criticité

Le flux neutronique permet de déterminer où se situent les neutrons et quelles sont leurs interactions avec le milieu. À partir du flux, il est possible de faire le bilan de population entre deux générations successives de neutrons. Le coefficient de multiplication effectif (k_{eff}) réalise ce bilan comme le montre la formule 1.13.

$$k_{\text{eff}} = \frac{\bar{\nu} \langle \Sigma_f \phi \rangle}{\langle \Sigma_a \phi \rangle + \text{fuites}} \quad (1.13)$$

Les fuites présentes dans cette formule témoignent des neutrons qui sortent du système considéré. En l'absence de fuites, lorsque le système considéré est constitué d'un motif élémentaire du réacteur (*e. g.* un assemblage) répété dans un pavage périodique infini, ce facteur devient le coefficient de multiplication infini (k_{∞}), présenté dans la formule (1.14).

$$k_{\infty} = \frac{\bar{\nu} \langle \Sigma_f \phi \rangle}{\langle \Sigma_a \phi \rangle} \quad (1.14)$$

Il est également possible de définir la réactivité ρ avec la formule (1.15) exprimant l'écart entre le k_{eff} et la criticité. Cette réactivité est exprimée en pour cent mille ou 10^{-5} (pcm).

$$\rho = \frac{k_{\text{eff}} - 1}{k_{\text{eff}}} \quad (1.15)$$

Avec ces grandeurs, il se distingue trois régimes :

- $k_{\text{eff}} < 1$ ou $\rho < 0$: régime **sous-critique**, la réaction en chaîne s'étouffe et la densité neutronique diminue ;
- $k_{\text{eff}} = 1$ ou $\rho = 0$: régime **critique**, la réaction en chaîne est auto-entretenu et la densité neutronique reste constante ;
- $k_{\text{eff}} > 1$ ou $\rho > 0$: régime **sur-critique**, la réaction en chaîne s'emballe et la densité neutronique augmente.

1.2.2.4 Spectre neutronique

Le flux neutronique décrit la densité de neutrons par énergie et par unité de volume. Il est possible de tracer cette densité en fonction de l'énergie des neutrons. Ce graphique, appelé spectre neutronique, est présenté dans la figure 1.16. Cette figure présente un spectre typique de réacteurs types REP et RSF en distinguant un RSF fluorure (le MSFR) et un RSF chlorure (le MSFR-Cl), deux concepts présentés dans le chapitre 2.

Suivant la zone énergétique dans laquelle se trouvent les neutrons produisant les fissions dans un système, celui-ci peut être défini comme étant thermique, épithermique ou rapide, selon le type de spectre neutronique associé. Un réacteur est souvent caractérisé par la zone de ce pic dans son fonctionnement nominal : un REP est par exemple un réacteur thermique et un RNR-Na, un réacteur rapide.

1.2.2.5 Neutrons prompts et retardés

La réaction de fission d'un noyau lourd produit ν neutrons. Mais tous ne sont pas produits au même instant. Ils sont divisés en deux catégories :

- les neutrons **prompts**. Ils sont émis immédiatement après la fission au nombre de ν_p ;

- les neutrons **retardés**, ou *delayed* en anglais. Il peut arriver que des fragments de fission — ou des éléments de leur chaîne de décroissance — se désexcitent après un certain temps en émettant un neutron. Ces éléments, appelé précurseurs de neutrons retardés, peuvent être regroupés en familles f de précurseurs en fonction du temps de désexcitation λ_f , allant de la fraction de seconde à la minute. Ces précurseurs émettent ainsi ν_{d_f} neutrons.

La figure 1.17 montre les spectres d'émission des neutrons prompts χ_p et retardés χ_d sur toutes les familles de l' ^{235}U et du ^{239}Pu en fonction de l'énergie.

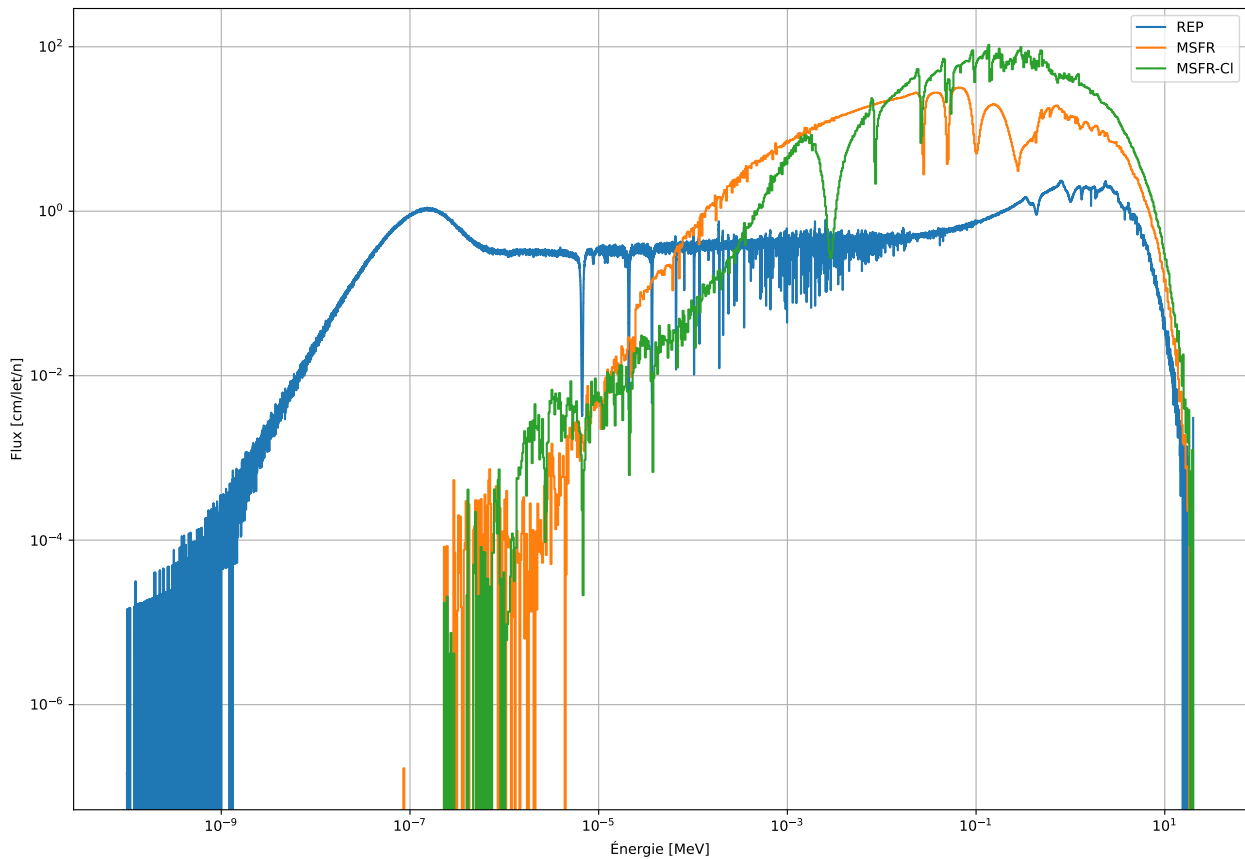


FIGURE 1.16 – Spectres neutroniques de différents types de réacteurs

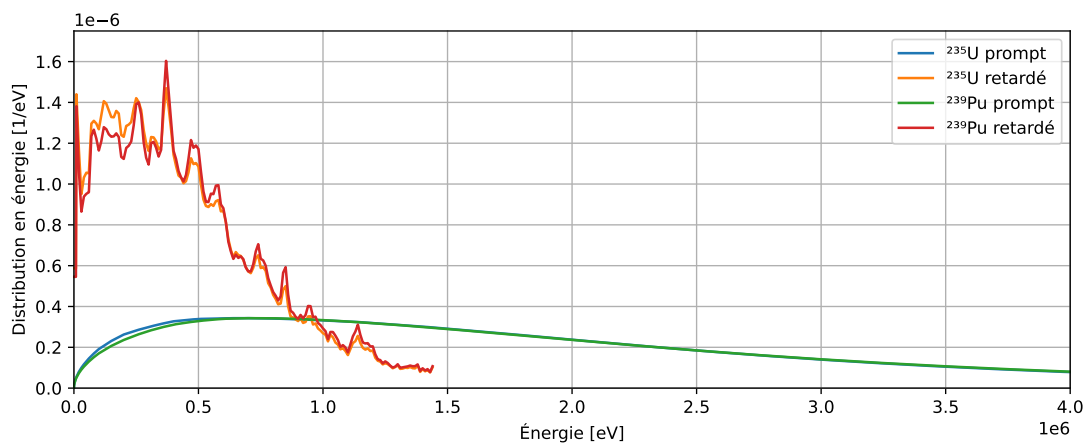


FIGURE 1.17 – Spectre d'émission des neutrons prompts et retardés de l' ^{235}U et du ^{239}Pu

La figure 1.17 renseigne qu'un neutron prompt est émis autour de 2 MeV en moyenne tandis qu'un neutron retardé l'est plutôt autour de 400 keV. Il est possible de définir la criticité prompte comme étant provoquée uniquement par les neutrons prompts ainsi que le coefficient de multiplication prompt (k_p), défini par la formule (1.16).

$$k_p = (1 - \beta)k_{\text{eff}} \quad (1.16)$$

1.2.2.6 Transport des neutrons

Une façon de déterminer la valeur du flux neutronique – et donc du transport des neutrons dans un système – est de résoudre l'équation de Boltzmann (1.17) qui est ici présentée sans prendre en compte de sources extérieures et en négligeant les fissions spontanées. Cette présentation est inspirée de [24].

$$\begin{aligned} \frac{1}{v(E)} \frac{\partial \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)}{\partial t} &= -\vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla} \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) - \Sigma_{\text{tot}}(\vec{r}, E) \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \\ &+ \underbrace{\int_0^{+\infty} dE' \iint_{4\pi} d^2\vec{\Omega}' \Sigma_s(E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}) \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t)}_{\langle \Sigma_s, \phi \rangle} \\ &+ \frac{1}{4\pi} \int_0^{+\infty} dE' \nu_p(\vec{r}, E') \Sigma_f(\vec{r}, E') \chi_p(E' \rightarrow E) \phi(\vec{r}, E', t) \\ &+ \frac{1}{4\pi} \sum_f \lambda_f P_f(\vec{r}, t) \chi_{d_f}(E) \end{aligned} \quad (1.17)$$

Cette équation fait le bilan entre les termes de disparition (par **transport** et par **interactions totales**) et les termes d'apparition (par **diffusion**, **fissions promptes** et **émission de neutrons retardés**) en mettant en rapport :

- $v(E)$ la vitesse des neutrons à l'énergie E ;
- $\psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$ le flux neutronique angulaire;
- $\phi(\vec{r}, E, t)$ le flux neutronique scalaire (1.9);
- $\Sigma_{\text{tot}}(\vec{r}, E)$ la section efficace macroscopique totale;
- $\Sigma_s(E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega})$ la section efficace macroscopique de diffusion (*scattering*);
- $\nu_p(\vec{r}, E) \Sigma_f(\vec{r}, E)$ le taux de production de neutrons prompts;
- $\chi_p(E)$ et $\chi_{d_f}(E)$ les spectres de neutrons de fissions prompts et retardés de la famille f (voir figure 1.17);
- λ_f et $P_f(\vec{r}, t)$ la constante de décroissance radioactive et la concentration des précurseurs de la famille f (voir section 1.2.2.5).

1.2.2.7 Contreréactions

Une contreréaction est une réponse du système à une perturbation, qu'elle soit neutronique ou thermique. Deux contreréactions sont particulièrement importantes dans le contexte de cette thèse : l'effet Doppler et la dilatation thermique du sel combustible.

L'effet Doppler va consister en une dilatation de la résonance des sections efficaces en fonction de la température. La figure 1.18 illustre cet effet sur un pic de résonance des sections efficaces de diffusion élastique et de capture de l' ^{238}U : le pic est élargi mais l'aire sous la courbe est conservée. Cela participe à augmenter le taux de réaction associé avec la température, ce qui peut par exemple favoriser des captures au détriment des fissions, réduisant ainsi la puissance du système et donc menant à une baisse de la température.

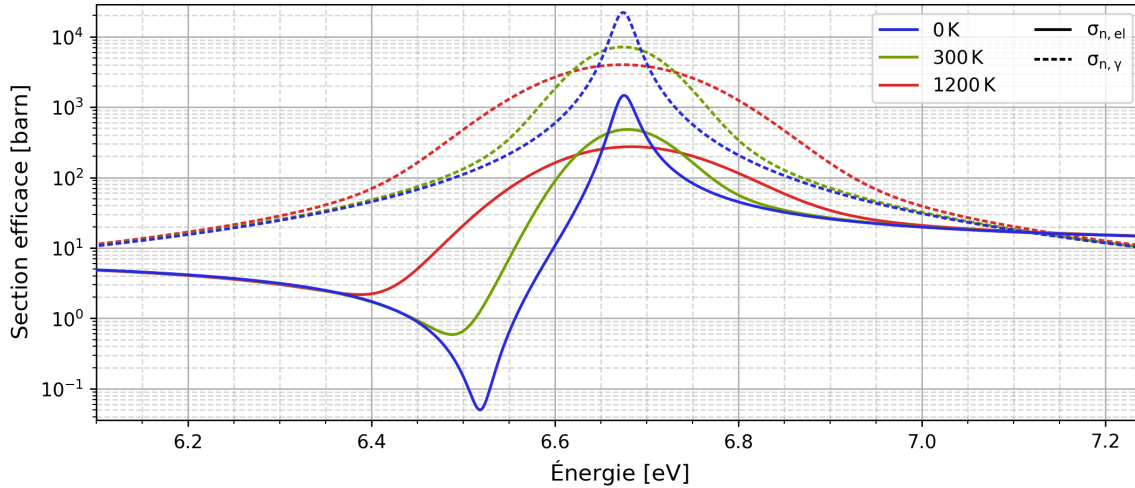


FIGURE 1.18 – Effet de la température sur des résonances de diffusion élastique et de capture de $l^{238}\text{U}$

Il est important de noter que la température faisant évoluer la densité des matériaux — et par conséquent, l'espace entre les noyaux — par dilatation thermique, cela produit un changement sur la longueur moyenne parcourue par les neutrons avant d'interagir. Cette propriété est directement liée au type de réacteur considéré : par exemple, la criticité d'un REP sous-moderé diminue avec la température. C'est également le cas dans un réacteur à sels fondus rapide, présenté dans le chapitre 2, puisque les fuites neutroniques augmentent avec la température et la dilatation du sel fait mécaniquement sortir du combustible de la zone active.

1.2.3 De la neutronique au combustible

1.2.3.1 Isotopes fissiles et fertiles

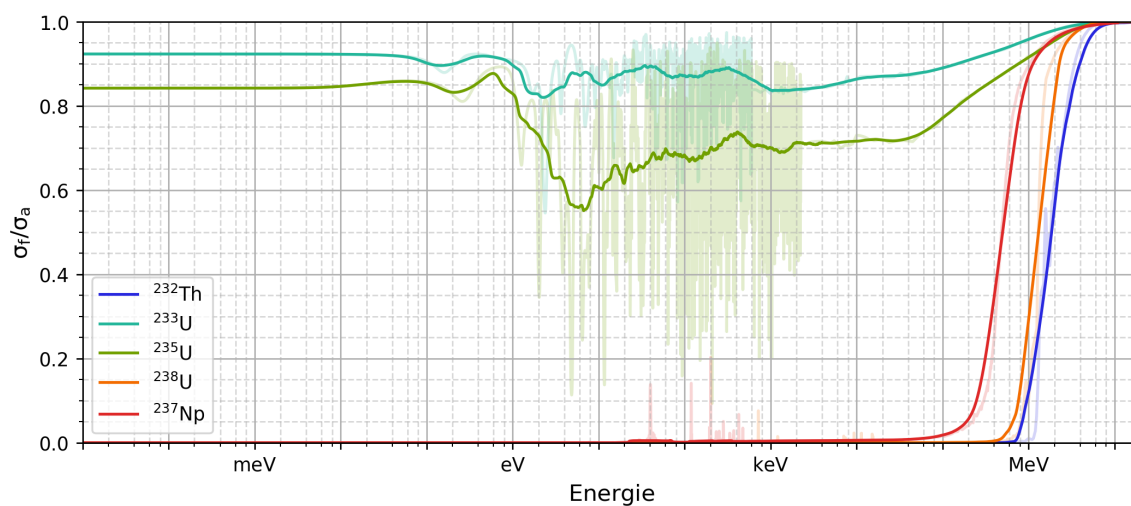
La grande majorité des réacteurs nucléaires actuels sont alimentés avec de l'uranium. L'uranium naturel possède deux isotopes majoritaires : $l^{235}\text{U}$ à hauteur de 0,7 % et $l^{238}\text{U}$ à hauteur de 99,3 %. Le premier est **fissile**, il s'agit par ailleurs du seul noyau fissile présent naturellement sur Terre. Dans les réacteurs à eau actuels (voir partie 1.3.1), sa teneur est augmentée jusqu'à 3,5 à 5 % dans le combustible qui est qualifié d'enrichi. Le second va au contraire plutôt capturer les neutrons dans les énergies classiques des réacteurs actuels. Présent à plus de 95 % dans le combustible, $l^{238}\text{U}$ va produire au cours de l'irradiation, par capture et deux décroissances β^- successives, du ^{239}Pu qui est fissile, phénomène explicité dans la section 1.2.3.3. Ainsi, $l^{238}\text{U}$ est dit **fertile**. La formule (1.18) définit le rapport α d'un isotope i , une grandeur d'intérêt en physique des réacteurs, comme étant le rapport entre la section efficace de capture et celle de fission de cet isotope en fonction de l'énergie du neutron incident [25].

$$\alpha_i(E) = \frac{\sigma_{\gamma,i}(E)}{\sigma_{f,i}(E)} \quad (1.18)$$

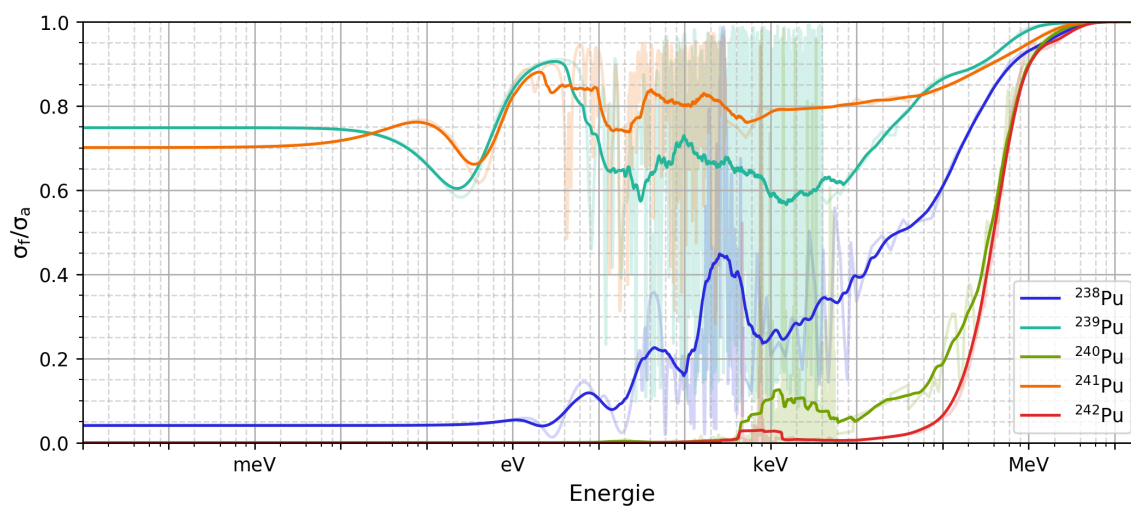
La formule (1.19) définit quant à elle la proportion de fission $\pi_i(E)$ d'un isotope i comme étant le rapport entre la section efficace de fission et la section efficace d'absorption de cet isotope, qui est également une transformation homographique normalisante du rapport α .

$$\pi_i(E) = \frac{\sigma_{f,i}(E)}{\sigma_{f,i}(E) + \sigma_{\gamma,i}(E)} = \frac{1}{1 + \alpha_i(E)} \quad (1.19)$$

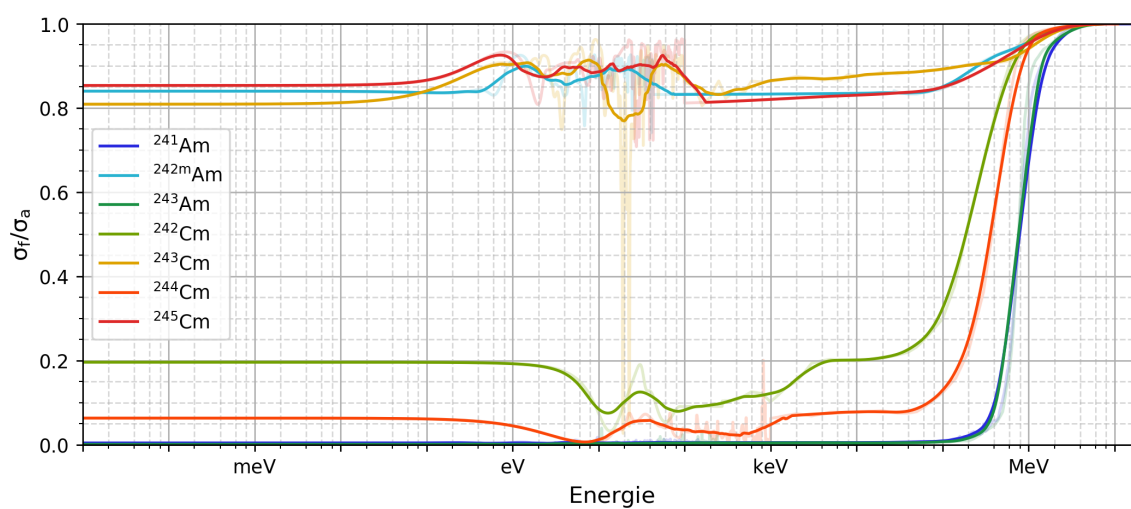
Cette grandeur témoigne ainsi de la probabilité de fission de l'isotope en fonction de l'énergie. La figure 1.19 montre cette proportion de fission pour différents isotopes d'intérêt dans cette thèse. Parmi elles, la figure 1.19a montre cette proportion de fission pour le ^{232}Th , les trois isotopes $^{233,235,238}\text{U}$ et le ^{237}Np , la figure 1.19b pour les cinq isotopes $^{238-242}\text{Pu}$ et la figure 1.19c pour les trois $^{241,242m,243}\text{Am}$ et les quatre $^{242-245}\text{Cm}$.



(a) Thorium 232, uranium 233, 235 et 238 et neptunium 237



(b) Plutonium 238 à 242



(c) Américium 241, 242m et 243 et curium 242 à 245

FIGURE 1.19 – Rapport entre la section efficace de fission et celle d'absorption pour des actinides d'intérêt, base de données JEFF-3.3

Plusieurs remarques :

- à partir de 10 MeV, les isotopes fissionnent sans capturer ;
- parmi les isotopes présentés, ceux ayant un nombre impair de neutrons sont fissiles puisque π est supérieur à 50 % ;
- le ^{238}Pu est fertile dans le domaine thermique mais fissile dans le domaine rapide, avec π dépassant les 50 %.

Seuls deux noyaux fertiles sont présents dans la nature : le ^{232}Th et l' ^{238}U .

1.2.3.2 Formation des actinides mineurs

L'uranium et le plutonium, par captures et décroissances successives, vont produire du neptunium, de l'américium, du curium et par traces, des noyaux encore plus lourds. Ces noyaux – neptunium, américium, curium, et les autres actinides excepté l'uranium et le plutonium – étant des actinides minoritaires dans le combustible irradié, sont appelés **actinides mineurs (AM)**. La figure 1.20 reprend le diagramme NZ présenté dans la figure 1.9 en faisant le *focus* sur les actinides d'intérêt et montre leur mode d'apparition par captures et décroissances successives.⁸

Les noyaux en vert sont les noyaux fissiles, le ^{238}Pu étant fissile en spectre rapide. L' ^{242}Am possède un état métastable (^{242m}Am) dont le rapport de branchement – appelé parfois *branching ratio (BR)* en anglais et noté ξ_i dans ce travail – est explicité dans l'interlude 1.1. Le ^{241}Pu a un temps de décroissance relativement court (14,3 ans), par conséquent l' ^{241}Am est le seul actinide mineur qu'il est possible de retrouver en quantité non négligeable dans un combustible non irradié.

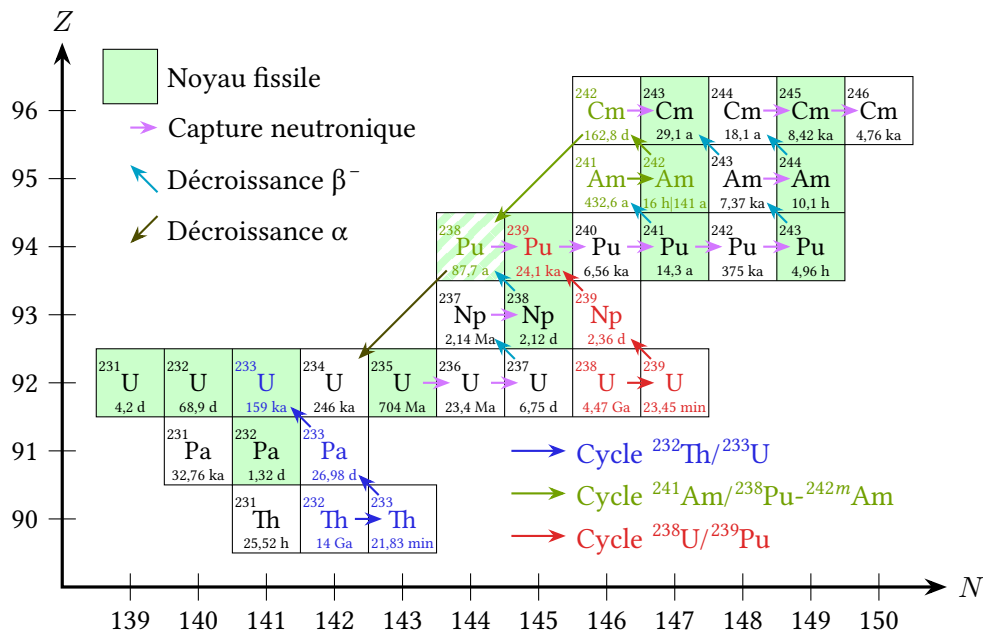


FIGURE 1.20 – Diagramme NZ de certains actinides avec leur mode principal d'apparition et illustration des cycles de régénération (inspiré de [27])

8. Le « d » (du latin *dies*) est le symbole international pour le jour [26]

⊕ Interlude 1.1 : Le rapport de branchement de l' ^{242}Am

Lorsqu'un noyau d' ^{241}Am capture un neutron, il a une certaine probabilité de donner un ^{242}Am ou alors un ^{242m}Am . Cette première probabilité, appelée rapport de branchement de l' ^{242}Am et notée $\xi_{242\text{Am}}$ ou ξ_{242} , dépend de l'énergie du neutron incident. La figure 1.21 montre ce ξ_{242} présent dans différentes bases de données (ENDF/B-VII.1, ENDF/B-VIII.0, JEFF-3.1.1 et JEFF-3/A). La version estampillée JEFF-3.3 est une reconstitution à partir des sections efficaces [28, 29] et sera la valeur utilisée dans la suite de ce travail.

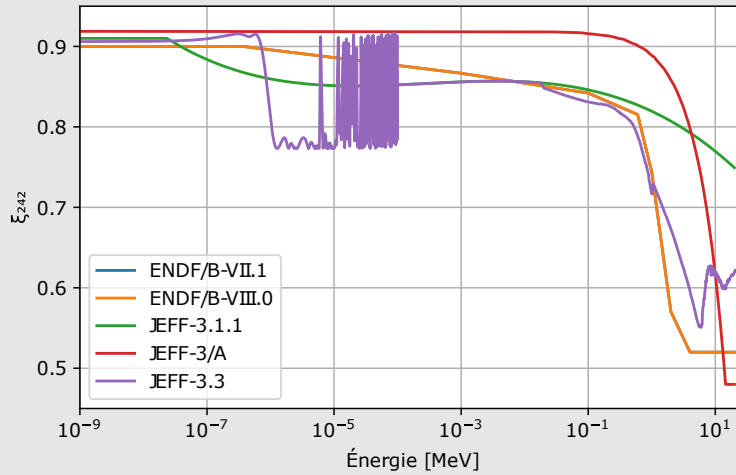
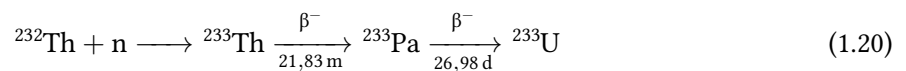


FIGURE 1.21 – Rapport de branchement de l' ^{242}Am pour plusieurs bases de données

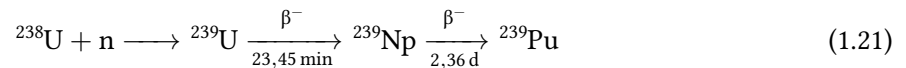
1.2.3.3 Cycles de régénération

Le cycle produit par la capture neutronique d'isotopes fertiles et par décroissances successives jusqu'à la formation d'un élément fissile est appelé **cycle de régénération**. Les deux principaux sont les suivants :

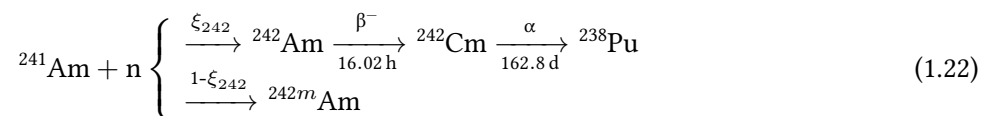
- le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ – aussi appelé Th/U – et qui est présenté par l'équation (1.20) ;



- le cycle $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ – aussi appelé U/Pu – et qui est présenté par l'équation (1.21).



Dans le cadre de cette thèse, un troisième noyau fertile est considéré : il s'agit de l' ^{241}Am . Il donne lieu à un troisième cycle spécifique à un incinérateur d'américium en spectre rapide, appelé dans ces travaux $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$ - ^{242m}Am ou encore Am/Pu-Am et présenté par l'équation (1.22).



Ce cycle est un cycle à branchement puisque la capture neutronique sur l' ^{241}Am peut donner lieu à la formation de l' ^{242}Am à l'état fondamental qui, du fait de sa demi-vie courte, forme du ^{242}Cm qui lui-même décroît au bout de 160 jours en ^{238}Pu qui est un noyau fissile en spectre rapide – mais il peut également donner lieu à la formation de l'état métastable ^{242m}Am fissile. Les trois cycles de régénération considérés sont mis en évidence dans le diagramme NZ de la figure 1.20.

1.2.3.4 Neutrons disponibles pour la régénération

Pour que la régénération d'un élément fissible soit possible, il est nécessaire d'avoir suffisamment de neutrons disponibles pour avoir une capture sur l'élément fertile associé. En considérant un cycle de régénération i/j (avec donc i fertile et j fissile), la formule (1.23) montre le calcul du nombre $N_{d,j}$ de fuites et d'absorptions dans les autres noyaux du système (donc hors i et j) après avoir entretenu la réaction en chaîne et le cycle de régénération en fonction de l'énergie des neutrons [30].

$$N_{d,j}(E) = \nu_j(E) - 2 \left(1 + \frac{\sigma_{\gamma,j}(E)}{\sigma_{f,j}(E)} \right) \quad (1.23)$$

Cette formule se retrouve en faisant un bilan sur les neutrons produits par la fission d'un noyau j , illustré par la figure 1.22 :

- La fission de j produit ν_j neutrons ;
- en partant du rapport α_j du fissile j , il est nécessaire d'utiliser $1 + \alpha_j$ neutrons pour maintenir la réaction en chaîne : 1 neutron va produire effectivement une fission tandis qu' α_j va se faire capturer pour donner un noyau k ;
- puisqu'il est nécessaire d'avoir $1 + \alpha_j$ noyaux de j pour entretenir la réaction en chaîne, il est nécessaire d'en régénérer $1 + \alpha_j$ et donc de faire capturer $1 + \alpha_j$ noyaux de fertile i pour les créer ;
- la soustraction de ces deux termes aux ν_j neutrons initiaux donne la formule (1.23).

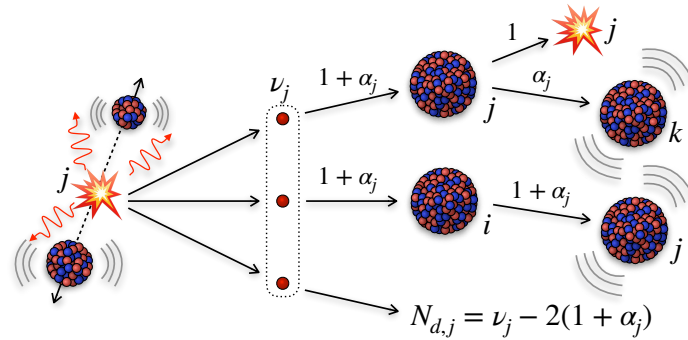


FIGURE 1.22 – Illustration d'un cycle de régénération i/j

Cette équation (1.23) est valable pour les cycles Th/U et U/Pu, mais pour le cycle à branchement Am/Pu-Am, le nombre de neutrons disponibles pour la régénération – correspondant à la capture sur l' ^{241}Am – est une combinaison linéaire des neutrons disponibles pour le cycle $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$ et pour le cycle $^{241}\text{Am}/^{242m}\text{Am}$ pondéré par le rapport de branchement de l' ^{242}Am , ce que montre la formule (1.24).

$$N_{d,^{238}\text{Pu}/^{242m}\text{Am}}(E) = \xi_{242}(E) N_{d,^{238}\text{Pu}}(E) + (1 - \xi_{242}(E)) N_{d,^{242m}\text{Am}}(E) \quad (1.24)$$

La figure 1.23 trace ce nombre de neutrons disponibles pour les trois cycles présentés précédemment en fonction de l'énergie, calculé avec la base de données JEFF-3.3.

Il est possible de faire quelques commentaires à la lumière de cette figure :

- le cycle Th/U est possible quel que soit le spectre neutronique du système, $N_d > 0$;
- les cycles U/Pu et Am/Pu-Am demandent des spectres rapides (avec des neutrons au-delà de respectivement 10 keV et 100 keV) pour assurer la régénération.

Un réacteur produisant autant de matière fissile qu'il n'en consomme ($N_d = 0$) est appelé **isogénérateur**, tandis que s'il en produit plus qu'il n'en consomme ($N_d > 0$), il est qualifié de **surgénérateur**. Enfin, s'il est consommateur net de matière fissile ($N_d < 0$), il s'agit d'un **incinérateur**.

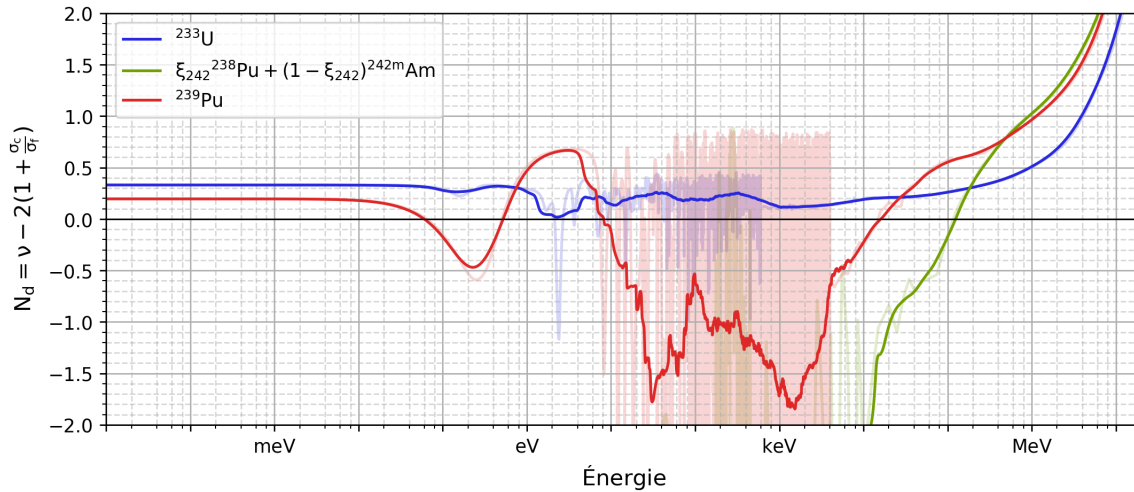


FIGURE 1.23 – Neutrons disponibles après régénération et prise en compte des captures, base de données JEFF-3.3 (inspiré de [24])

1.2.3.5 Neutrons nécessaires pour l'incinération

L'un des objectifs premiers présentés dans cette thèse est de produire des fissions à partir de noyaux lourds. Ce phénomène, qui est défini comme étant de l'incinération dans les sections suivantes, demande un certain nombre de neutrons par noyau pour se réaliser. Puisqu'un noyau va avoir une certaine proportion de fission (voir sections 1.2.3.1 et 4.1.2.5), et en négligeant les autres interactions telles que le (n,2n), un neutron ne va pas nécessairement produire une fission. Illustration avec un exemple simplifié : soient 1000 noyaux de ^{239}Pu , combien de neutrons est-il nécessaire pour réaliser 1000 fissions ?

- La proportion de fission du ^{239}Pu est prise à 80 % dans cet exemple, ainsi les 1000 premiers neutrons produisent 800 fissions et 200 captures donc 200 noyaux de ^{240}Pu ;
- les 200 neutrons suivants produisent 100 fissions et 100 captures sur le ^{240}Pu ;
- les 100 neutrons suivants produisent 85 fissions et 15 captures sur le ^{241}Pu ;
- les 15 neutrons suivants produisent 7,5 fissions et 7,5 captures sur le ^{242}Pu ;
- la demi-vie du ^{243}Pu étant considérée courte devant les temps étudiés, il est fait l'hypothèse que les 7,5 noyaux décroissent en ^{243}Am ;
- les 7,5 neutrons suivants produisent ainsi 1,5 fission et 6 captures sur l' ^{243}Am ;
- etc.

Ainsi, il est nécessaire d'« envoyer » environ 1300 neutrons pour réaliser 1000 fissions. Le nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération d'un ^{239}Pu est d'environ 1,3 en première approximation. Cette approximation fait l'hypothèse fautive que les 100 ^{241}Pu ont tous absorbé un neutron sans avoir eu le temps de décroître en ^{241}Am . La proportion concernée est fortement dépendante du spectre du réacteur et peut être de l'ordre de 50 % ; la section 4.1.2.6 considère un modèle réfutant cette hypothèse qui ne change pas les conclusions de cette partie.

Soient \mathcal{C}_i la chaîne de capture et de décroissance — ou chaîne d'incinération — de l'isotope i et π_i la proportion de fission moyennée par le spectre. La formule (1.25) donne pour l'exemple la chaîne de capture et de décroissance du ^{239}Pu présentée plus haut.

$$\mathcal{C}_{^{239}\text{Pu}} = \{^{239}\text{Pu}, ^{240}\text{Pu}, ^{241}\text{Pu}, ^{242}\text{Pu}, ^{243}\text{Am}, ^{244}\text{Cm}, \dots\} \quad (1.25)$$

Il est nécessaire d'avoir suffisamment de neutrons pour qu'un noyau i aboutisse *in fine* à une fission. La formule (1.26) montre le calcul du nombre $N_{n,i}$ de neutrons nécessaires pour l'incinération de l'isotope i .

$$N_{n,i} = 1 + \sum_{j \in \mathcal{C}_i} \prod_{k=i}^j (1 - \pi_k) \quad (1.26)$$

La formule (1.27) illustre le calcul du nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération du ^{239}Pu présenté en début de section.

$$N_{n,^{239}\text{Pu}} = 1 + (1 - \pi_{^{239}\text{Pu}}) \left(1 + (1 - \pi_{^{240}\text{Pu}}) \left(1 + (1 - \pi_{^{241}\text{Pu}}) \left(1 + (1 - \pi_{^{242}\text{Pu}}) (1 + (1 - \pi_{^{242}\text{Pu}}) (1 + \dots)) \right) \right) \right) \right) \quad (1.27)$$

Ce nombre est fortement dépendant du spectre du réacteur étudié. Cette notion est plus développée dans les sections 4.1.1 et 4.1.2.6. Enfin, il est possible de définir une notion annexe : l'estimation du nombre de neutrons produits par cette incinération, défini par la formule (1.28) en remplaçant le nombre de neutrons consommés à chaque étape par le $\bar{\nu}$ de chaque noyau de la chaîne d'incinération.

$$N_{p,i} = \sum_{j \in \mathcal{C}_i} \bar{\nu}_j \pi_j \prod_{k=i}^j (1 - \pi_k) \quad (1.28)$$

La chaîne d'incinération \mathcal{C}_i peut être modélisée avec une chaîne de Markov absorbante, notamment dans les calculs numériques.

À retenir (1.2)

La densité de population des neutrons au sein d'un matériau dont sont connues les sections efficaces d'interaction est définie avec le flux neutronique, lui-même calculé avec les équations du transport. Ce flux permet de calculer des taux de réaction ainsi que la réactivité du système permettant de mesurer l'entretien de la réaction en chaîne, à l'aide de l'émission des neutrons prompts et retardés. L'analyse du spectre des neutrons d'un réacteur (thermique, épithermique ou rapide) donne des clefs de lecture de son fonctionnement intrinsèque ou de l'évolution de celui-ci. Enfin, il est possible de régénérer de la matière fissile à partir de noyaux fertiles, le ^{232}Th et le ^{238}U présents dans la nature ainsi que l' ^{241}Am produit dans les cœurs, pour fabriquer de nouveaux noyaux fissiles dans des réacteurs à neutrons rapides qui permettent de mettre en œuvre ces cycles de régénération.

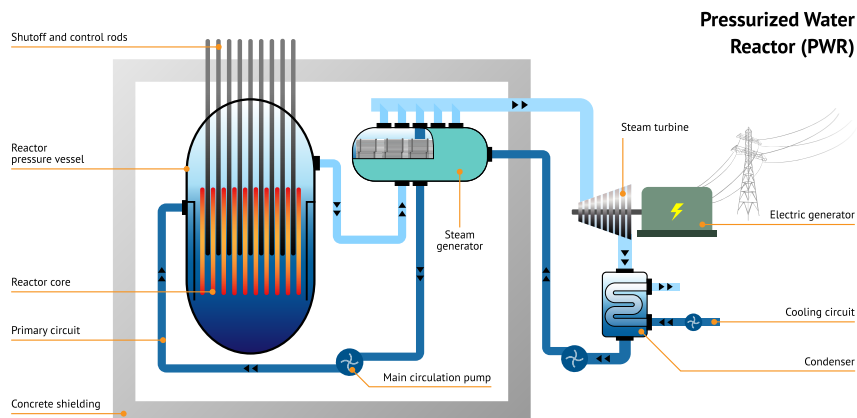


FIGURE 1.24 – Principe de fonctionnement d'un REP [32]

1.3 Les réacteurs et le cycle du combustible français

1.3.1 Illustration du principe de fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée

Une des façons les plus simples de produire de l'électricité est l'utilisation d'un alternateur branché sur une turbine. Cette turbine peut être activée par le mouvement de l'eau dans le cadre d'un barrage hydroélectrique ou par de la vapeur sous pression. Cette vapeur est produite en chauffant de l'eau. Ce chauffage est fait avec des combustibles fossiles — charbon, gaz, pétrole — dans les centrales thermiques ou par fission nucléaire à l'intérieur d'un réacteur dans les centrales nucléaires.

Le fonctionnement précis d'un réacteur nucléaire diffère suivant sa technologie, mais le principe d'une centrale nucléaire électrogène reste toutefois le même. Les centrales se trouvent pour l'immense majorité⁹ proche de sources froides d'origine naturelle, telles que les fleuves, les rivières ou les littoraux. Leur circuit de refroidissement peut soit être ouvert, c'est-à-dire prélevant de l'eau dans la source froide puis la rejetant dans cette même source, soit être fermé via l'utilisation d'une tour aéroréfrigérante permettant de refroidir le circuit avant réinjection dans la centrale [31]. Les réacteurs les plus courants sur la planète sont les réacteurs à eau pressurisée (REP, aussi appelés PWR (*Pressurized Water Reactor*) en anglais), représentant 71 % des réacteurs [15]. Les réacteurs à eau bouillante (REB) (aussi appelés BWR (*Boiling Water Reactor*) en anglais) et les CANDU (*CANadian Deuterium Uranium*) représentent respectivement 14 % et 11 % des réacteurs déployés dans le monde [15]. Enfin, des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium (RNR-Na) sont en fonctionnement dans quelques pays, notamment la Russie.

Les REP se caractérisent par la pression de l'eau contenue dans leur cœur. Cette pression, de l'ordre de 155 bars, assure à l'eau appelée primaire de rester liquide. Des générateurs de vapeur (GV) assurent l'interface entre le circuit primaire et le circuit secondaire, celui-ci contenant la vapeur produite dans ces derniers. Et c'est enfin cette vapeur contenue dans le circuit secondaire qui, sous pression, va faire tourner la turbine génératrice. La figure 1.24 schématise le principe de fonctionnement d'un REP [32].

L'eau joue ici à la fois un rôle de caloporteur et de modérateur des neutrons. En effet, les neutrons de fissions (cf. figure 1.17) sont ralentis par chocs successifs sur l'eau. Le spectre de fonctionnement normal des REP est un spectre thermique. Le fonctionnement normal d'un REP se caractérise par l'absence de vapeur au sein du cœur et par le confinement du circuit primaire, directement en contact avec les assemblages de combustible, à l'intérieur du bâtiment réacteur. Tous les réacteurs électrogènes français sont aujourd'hui des REP.

1.3.2 Le parc français et son déploiement

Lorsque le Premier ministre Pierre Messmer annonce le plan qui portera son nom le 6 mars 1974 (© dans la figure 1.4), la France possède déjà 11 réacteurs totalisant 2600 MW_e :

- 8 sont des UNGG (*Uranium Naturel Graphite-Gaz*), des réacteurs modérés au graphite et refroidis au gaz [33];
- Chooz A, le premier REP français;
- EL4, à Brennilis, un réacteur à eau lourde refroidi au gaz — HWGCR (*Heavy Water Gas Cooled Reactor*);
- Phénix, premier prototype de recherche électrogène de RNR-Na [34].

Le déploiement rapide de la II^e génération de réacteurs électrogènes, en remplacement de la filière UNGG, fait grimper la puissance installée jusqu'à un maximum de 63 GW_e avec le démarrage de 34 réacteurs de 900 MW_e, 20 réacteurs de 1300 MW_e et enfin 4 réacteurs de 1450 MW_e. Dans le même temps, le CEA lance l'étude et la construction de Superphénix, un RNR-Na de 1420 MW_e dans la centrale nucléaire de Creys-Malville : la

9. La centrale nucléaire américaine de Palo Verde est refroidie grâce aux effluents de la ville de Phoenix.

filère des RNR-Na est vouée à succéder à la II^e génération. Mais la fin du xx^e siècle met un coup d'arrêt à cette stratégie : la construction de nouveaux réacteurs freine dans le monde des suites de la catastrophe de Chernobyl, l'estimation des réserves mondiales d'uranium est très optimiste et le réacteur Superphénix est définitivement arrêté par décision politique [35]. De plus, il est possible de constater une première baisse à l'échelle mondiale dans les années 1990 due à la fermeture des premières centrales nucléaires.

Le début du XXI^e siècle voit cependant arriver un nouvel objectif principal. La lutte contre le changement climatique fait apparaître en 2005 les premiers scénarios multipliant la capacité nucléaire électrogène installée par 10 à l'horizon 2050 [36] et le risque de pénurie d'uranium revient. Le projet ASTRID (*Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration*) – un démonstrateur de RNR-Na de 600 MW_e – est lancé en 2006 et la construction de l'EPR de Flamanville démarre en 2007.

Les années 2010 commencent par l'accident de Fukushima qui met un nouveau coup d'arrêt dans le développement du nucléaire européen et mondial : certains pays comme l'Allemagne décident même de sortir de l'énergie nucléaire. Couplé à la découverte de nouvelles ressources en uranium, la fermeture du cycle n'est plus une priorité. En 2020, les deux tranches de 900 MW_e de Fessenheim sont fermées et en 2024, l'EPR (*Evolutionary Pressurised Reactor*, anciennement *European Pressurised Reactor*) de Flamanville a divergé et a été raccordé au réseau.

Aujourd'hui, 57 réacteurs sont en fonctionnement en France, répartis dans 18 CNPE (*Centre Nucléaire de Production d'Électricité*) sur tout le territoire métropolitain. La figure 1.25 montre l'évolution de la puissance nucléaire française installée avec, pour comparaison, la même évolution au niveau européen et mondial, provenant de [15]. Certaines dates clés présentées dans la figure 1.4 sont également rappelées. La baisse de puissance installée au cours des années 2020 est due à la fois aux politiques de sortie du nucléaire susnommées, mais également au manque de données fiables pour certains pays dans la source [15], notamment à cause de la guerre en Ukraine.

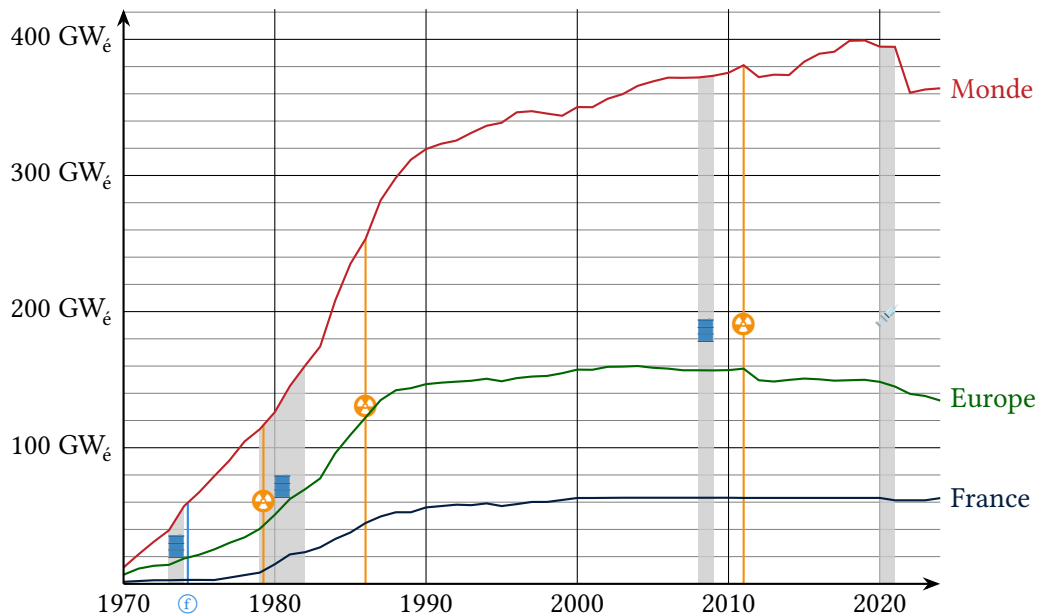


FIGURE 1.25 – Puissance nucléaire électrogène installée en France, en Europe et dans le monde depuis 1970 [15]

Le tableau 1.1 présente les caractéristiques des différents paliers actuellement mis en service en France avec l'ajout de l'EPR2 prévu pour la fin des années 2030. Ces caractéristiques sont utiles pour le chapitre 6.

Tranches	CP0	CPY	P4	P'4	N4	EPR	EPR2
Puissance thermique [MW _{th}]	2785	2785	3817	3817	4270	4300	4590*
Puissance électrique [MW _e]	880–910	890–915	1330–1335	1300–1330	1495–1500	1630	1670*
Masse de métaux lourds [t]	72,5	72,5	104	104	110,5	120	120*
Nombre d'assemblages	157	157	193	193	205	241	241*
Hauteur des assemblages [mm]	3645	3645	4266	4266	4266	4200	4200*
Années de mise en service	1978–1979	1980–1987	1984–1986	1987–1993	1996–1999	2024	2035†
Nombre (en 2025)	4	28	8	12	4	1	6–14‡

*l'EPR2 étant un réacteur en projet, certaines informations pourront changer d'ici à sa réalisation.

†projection de mise en service de Penly 3 [37].

‡en 2025, 6 tranches sont en projet et 8 sont à l'étude [38,39].

TABLEAU 1.1 – Caractéristiques principales des différents paliers de réacteurs en France [15, 40]

Enfin, la figure 1.26 place géographiquement ces différents réacteurs sur la carte de France avec les emplacements en discussion pour les prochaines tranches [35, 41].

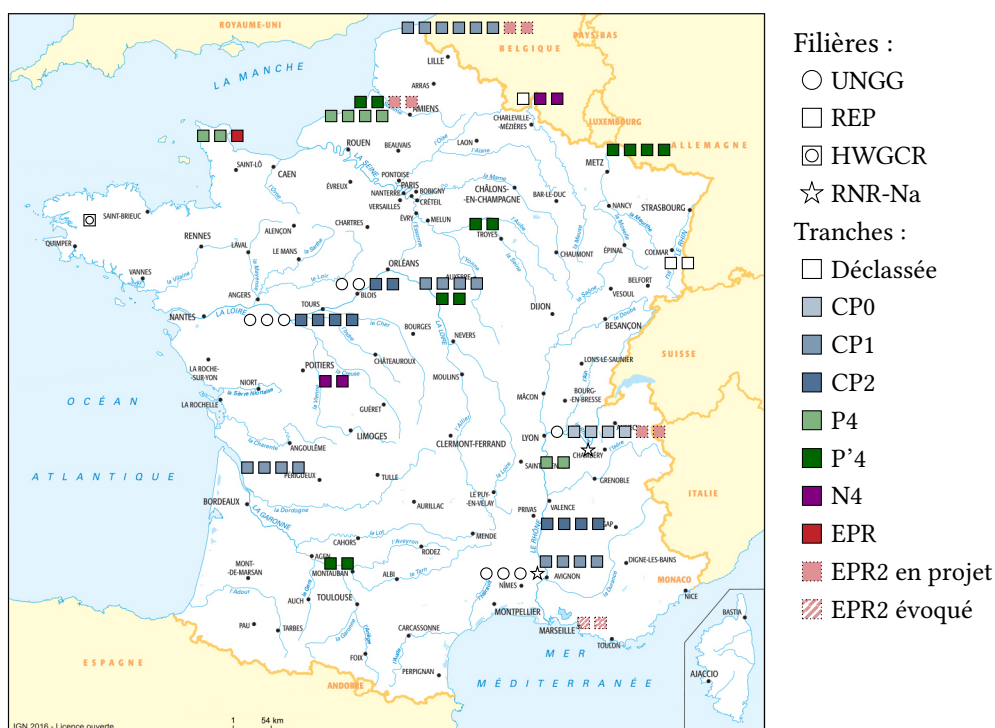


FIGURE 1.26 – Le parc électrogène français en 2025 [15, 35, 41]

1.3.3 Le cycle du combustible français

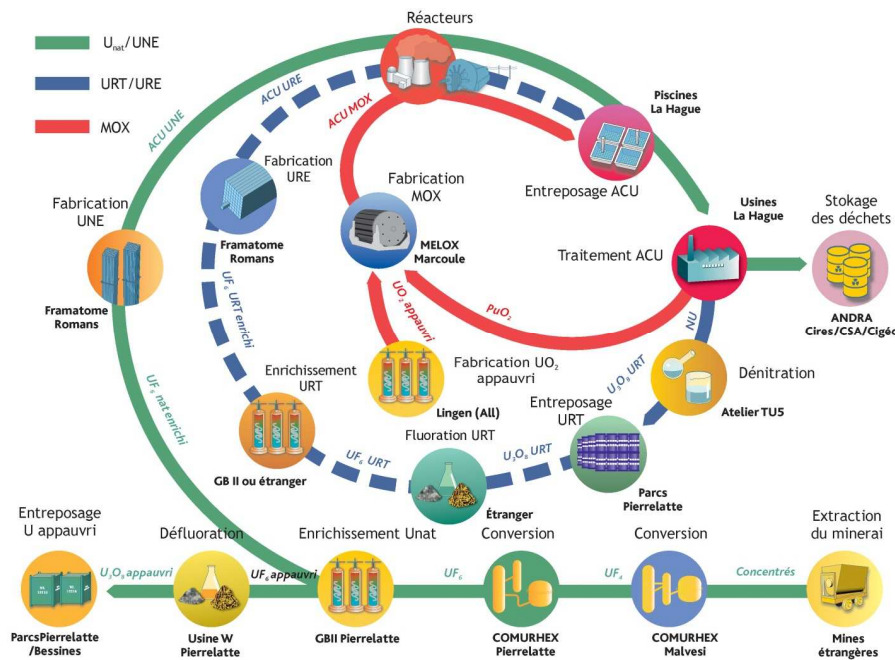
Le cycle du combustible¹⁰ est l'ensemble des étapes d'extraction, de fabrication, d'irradiation, de retraitement et de recyclage du combustible des centrales nucléaires.

10. À ne pas confondre avec les cycles de régénération présentés section 1.2.3.3

Un cycle qui ne recycle pas les combustibles UNE (Uranium Naturel Enrichi) usés et planifie leur stockage direct est un cycle **ouvert**. Il fait appel constamment à l'uranium naturel (dans le cas d'un cycle U/Pu). Ce cycle ouvert est mis en œuvre dans plusieurs pays, notamment les États-Unis. *A contrario*, un cycle **fermé** est un cycle indépendant de l'uranium naturel (dans le cas d'un cycle U/Pu) et n'a plus besoin d'exploiter des gisements de matières. Pour fonctionner, ce type de cycle nécessite le déploiement significatif de réacteurs iso- ou surgénérateur de matière fissile.

Le cycle du combustible actuellement mis en œuvre en France est un cycle **monorecyclant** le plutonium, présenté dans la figure 1.27 [42]. Les grandes étapes sur le sol français sont les suivantes :

- l'uranium naturel (^{nat}U) extrait des mines est converti par Orano sur les sites de Malvesi et Pierrelatte ;
- l' $^{nat}\text{UF}_6$ obtenu est enrichi dans l'usine d'Orano Georges-Besse II (GBII) à Pierrelatte pour devenir de l' ^{enr}U . Cette opération fabrique également de l'uranium appauvri (^{app}U), aujourd'hui largement entreposé (cf. section 6.1.3) ;
- l' ^{enr}U est utilisé pour fabriquer les combustibles UNE sous forme d'oxyde d'uranium (UOX) et irradiés en REP ;
- En France, les combustibles UNE sont traités au sein de l'usine Orano La Hague. Après traitement, plusieurs types de substances radioactives distinctes sont gérés : l'URT (Uranium de ReTraitement) et le plutonium sont entreposés en vue d'une valorisation tandis que les AM et les PF sont conditionnés et entreposés sur le site de La Hague. Ces derniers sont des déchets nucléaires, destinés au stockage de déchets ultimes à l'ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs) ;
- le plutonium issu du traitement des combustibles UNE est recyclé une fois dans l'usine d'Orano Melox à Marcoule sur un support en ^{app}U pour fabriquer du combustible MOX (Mélange d'Oxydes). Ce combustible MOX est irradié dans 22 REP appartenant au palier 900 MW_e. Aujourd'hui, les combustibles MOX usés sont entreposés dans les piscines de La Hague, ils concentrent le plutonium (un combustible MOX usé remplaçant environ huit combustibles UNE usés) et constituent une réserve stratégique de plutonium.



*ACU : Assemblage Combustible Usé, NU : Nitrate d'Uranyle $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$

FIGURE 1.27 – Vue schématique du cycle du combustible REP français en 2018 [42]

L'URT issu du traitement des UNE est entreposé en France, il peut être réenrichi pour fabriquer les combustibles URE (Uranium de Retraitement Enrichi). L'URT est donc entreposé pour être chargé dans les REP d'EDF (Électricité De France), ce stock constitue une réserve stratégique en cas de crise temporaire de l'uranium naturel. Le cycle du combustible français peut donc valoriser l'uranium et le plutonium : c'est la stratégie de **monorecyclage** de l'uranium et du plutonium. Ce monorecyclage de l'uranium a été mis en œuvre dans deux REP 900 MW_e de la centrale de Cruas-Meysses jusqu'en 2013 et ces URE ont été enrichis dans l'usine de Rosatom à Seversk, en Russie. La reprise de cette stratégie par EDF est prévue, mais la temporalité et la pérennité de sa mise en œuvre restent néanmoins incertaines du fait des tensions géopolitiques relancées par la guerre en Ukraine. Aujourd'hui, une filière européenne d'enrichissement et de conversion de l'URT est en discussion. Les combustibles URE irradiés historiques sont entreposés en piscine de refroidissement à La Hague.

Ce cycle du combustible est simplifié pour les études de scénarios présentées dans le chapitre 6.

💡 À retenir (1.3)

Les réacteurs nucléaires électrogènes utilisent la chaleur produite par la fission nucléaire dans le combustible pour produire de la vapeur et générer de l'électricité. Dans les réacteurs les plus présents dans le monde, les REP et les REB, le combustible est de l'uranium dont la proportion en ²³⁵U est enrichie pour atteindre de 3,5 % à 5 %, ce dernier isotope étant le seul fissile présent naturellement.

La France possède un parc de 57 réacteurs de type REP répartis en quatre paliers de puissance : 32 de 900 MW_e, 20 de 1300 MW_e, 4 de 1450 MW_e et un EPR de 1650 MW_e. La France est l'un des seuls pays du monde à mettre en œuvre une stratégie de monorecyclage du plutonium dans les combustibles MOX et l'uranium irradié peut être réenrichi dans des combustibles URE.

1.4 Une perspective d'incinération des déchets nucléaires

1.4.1 Perspectives d'évolution du parc français et du cycle du combustible associé

À la fin des années 2010, le projet ASTRID est arrêté [43] et des industriels comme Orano s'interrogent sur l'utilisation du plutonium, et en particulier celui des CU MOX : c'est dans ce contexte que démarre la thèse de Laura Mesthiviers en 2019 portant originairement sur la gestion du plutonium dans de petits réacteurs à sels fondus [27]. La stratégie française évolue avec le projet MRREP (Multi-Recyclage du plutonium en REP) pour stabiliser les réserves de plutonium [44] et le conserver pour un éventuel parc de RNR à l'horizon de la fin du siècle. Mais de nouvelles questions d'ordre géopolitique apparues au début des années 2020 viennent une nouvelle fois changer la donne : le début de la guerre en Ukraine et l'apparition dans le débat public de la notion de souveraineté énergétique [35], la perte de la mine d'uranium d'Orano au Niger [45] ou encore l'accélération du déploiement du parc de réacteurs en Chine [46] relancent l'intérêt français pour la fermeture du cycle.

Le président de la République a annoncé le 10 février 2022 à Belfort la construction de six tranches EPR2 qui seraient hypothétiquement installées dans les trois sites présentés dans la figure 1.26 [38, 47]. À la suite de cela, plusieurs annonces ont fait état de la volonté de rajouter huit tranches supplémentaires dont les sites supposés sont également présentés dans la figure 1.26 [41]. Une commission d'enquête parlementaire a été créée à l'Assemblée nationale dans la foulée pour « établir les raisons de la perte de souveraineté et d'indépendance énergétique de la France » afin de dresser des propositions pour accompagner cette relance [35]. En parallèle de la construction de nouveaux réacteurs, le prolongement des réacteurs actuels jusqu'à 60 ans — voire, pour des estimations plus optimistes, 70 ou 80 ans — est d'ores et déjà à l'étude, certains réacteurs ayant déjà effec-

tué leur 4^e visite décennale lors de la rédaction de cette thèse. L'État français a également lancé un grand plan d'investissement pour des projets et des *startups* dans le « nouveau » nucléaire, avec notamment des projets de SMR (*Small Modular Reactor*) de type REP et d'AMR (*Advanced Modular Reactor*) de IV^e génération — notion présentée dans le chapitre 2 — qui sont de petits réacteurs modulaires voués à être construits en série [48].

Dans la suite du discours de Belfort [38] et des Conseils de politique nucléaire ayant eu lieu en 2024 et 2025, diverses perspectives se sont dégagées sur l'évolution du cycle du combustible en actant notamment la poursuite de la stratégie du traitement-recyclage. En découle le renouvellement des installations sur le site de l'usine d'Orano La Hague. La filière française construit une stratégie à moyen terme de multirecyclage du plutonium en REP (projet MRREP) avec, notamment, le déploiement de combustibles MOX-MR dans les futurs EPR2, consistant en un assemblage hétérogène utilisant plusieurs teneurs différentes de plutonium [49]. La stratégie à plus long terme envisagée est *in fine* la fermeture du cycle, soit l'affranchissement complet en ^{nat}U [50]. Dans ce cadre, la transition vers un parc REP 100 % MOX/RNR-Na surgénérateurs ou entièrement RNR-Na isogénérateurs est étudiée par la filière. Néanmoins, le pilotage du déploiement de RNR-NA en fonction de l'accès à la ressource en ^{nat}U pourrait mener à des parcs mixtes REP/RNR-Na aux proportions moins figées.

La décision politique d'arrêter le projet ASTRID [43] en 2019, l'arrêt puis le retour en 2024 du projet Nuward [51] et la relance annoncée au Conseil de politique nucléaire de mars 2025 d'un programme de travail permettant l'atteinte de la fermeture du cycle dans la seconde moitié du siècle [52] incitent à prendre des précautions quant à la réalisation concrète des projets de réacteurs discutés actuellement et aux plannings avancés pour le futur du nucléaire français à long terme.

1.4.2 Les déchets nucléaires et le statut ambigu du plutonium

En France, depuis la loi n° 91-1381 du 30 décembre 1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs, appelée loi Bataille, la loi n° 2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs [53] et l'article L. 542-1-1 du Code de l'environnement en vigueur depuis le 12 février 2016 [54], la définition d'un **déchet** nucléaire inscrite dans la loi est la suivante :

Les déchets radioactifs sont des substances radioactives pour lesquelles aucune utilisation ultérieure n'est prévue ou envisagée ou qui ont été requalifiées comme tels par l'autorité administrative en application de l'article L. 542-13-2.

Une substance radioactive qui n'est pas un déchet est appelée une **matière** radioactive. La loi du 28 juin 2006 instaure l'édition d'un plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs (PNGMDR) mis à jour régulièrement, la sixième édition couvrant la période 2022–2026. Le PNGMDR vise à recenser les connaissances et les travaux portant sur la gestion des matières et des déchets radioactifs ainsi qu'à élaborer la planification de cette gestion [55]. Le PNGMDR 2022–2026 a ajouté la notion de temporalité dans la gestion de la matière radioactive : il est nécessaire de définir une stratégie globale d'entreposage à une échéance de temps de 30 ans [56]. Les différents déchets radioactifs sont catégorisés en fonction de leur période et de leur activité par l'ANDRA — une agence nationale chargée de gérer les déchets nucléaires — selon la classification présentée dans le tableau 1.2 [57].

Les déchets issus de l'industrie électronucléaire représentent 66,01 % de tous les déchets radioactifs. Parmi ceux-ci, les déchets de haute activité à vie longue (HA-VL) ne représentant que 0,2 % de déchets tout en concentrant 97,2 % de la radioactivité entreposée à La Hague en attente de la réalisation du projet Cigéo (*Centre Industriel de Stockage GÉologique*) qui est dimensionné à date pour le parc existant [59]. Ces déchets sont principalement composés des substances provenant des combustibles usés et qui sont conditionnés par vitrification dans des CSD-V (*Conteneur Standard de Déchets Vitrifiés*). Le volume de déchets de haute activité conditionnés en CSD-V produit jusqu'à fin 2023 représente un volume de 3792 m³ [60]. La figure 1.28 illustre ce volume en représentant un cube de 15,6 m de côté au milieu de la place Victor Hugo à Grenoble.

		Période radioactive		
		Vie très courte (période radioactive < 100 jours)	Principalement vie courte (période radioactive < 31 ans)	Principalement vie longue (période radioactive > 31 ans)
Activité (Bq/g)	Très faible activité (< 100 Bq/g)	VTC Gestion par décroissance radioactive	TFA Stockage de surface	
	Faible activité (entre 100 et 10 ⁶ Bq/g)		FMA-VC Stockage de surface	FA-VL Stockage à faible profondeur
	Moyenne activité (entre 10 ⁶ et 10 ⁹ Bq/g)			MA-VL
	Haute activité (> 10 ⁹ Bq/g)	Non applicable	HA Stockage géologique profond	

TABLEAU 1.2 – Classification des déchets nucléaires et gestions proposées par l'ANDRA [57, 58]

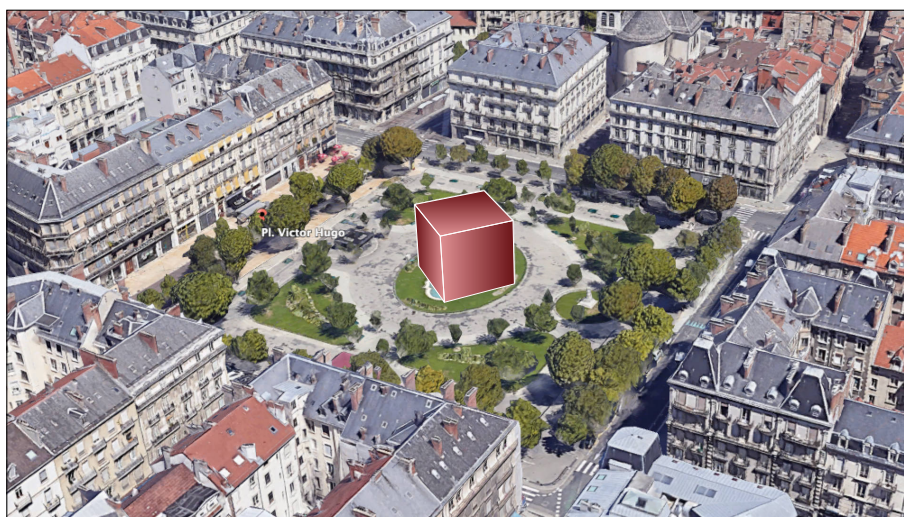


FIGURE 1.28 – Illustration du volume des déchets de haute activité conditionnés produits en France jusqu'en 2020

Les réacteurs à eau actuels produisent quatre types de substances radioactives (cf. section 1.3.3) :

- des PF, dont les demi-vies peuvent être courtes (moins de 30 ans) ou longues (de 30 ans à plusieurs millions d'années), non valorisables ;
- de l'uranium entreposé sous forme d'URT, qui est une matière valorisable notamment dans les combustibles URE ;
- du plutonium, valorisé en France dans les combustibles MOX lorsqu'issu du traitement des CU UNE et valorisable lorsqu'issu des CU MOX ;
- des AM, dont les demi-vies radioactives s'étendent de quelques années à plusieurs dizaines de milliers d'années, non valorisables dans le cycle du combustible actuel.

Ainsi, le plutonium est aujourd'hui défini comme une matière valorisable monorecyclée en REP et, de ce fait, concentrée dans les combustibles MOX usés, réduisant les capacités d'entreposage par rapport aux combustibles UOX [43]. Les CU MOX sont pour leur part entreposés. Cependant, le statut du plutonium pourrait être remis en cause si aucune utilisation pour le plutonium issu du traitement des CU MOX n'est mise en œuvre dans les 30 ans [56]. La fermeture du cycle du combustible avec des RNR est la stratégie long terme historique

mais complexe à déployer en France. S'il s'agit d'une ressource précieuse pour constituer et alimenter un parc de RNR, s'il n'était plus considéré comme une ressource, il deviendrait un élément toxique à impact majorant soit le déchet majoritaire demandant de multiplier par dix la capacité engagée actuellement dans le projet Cigéo [61]. En conséquence, il est nécessaire de trouver un exutoire au plutonium des CU MOX. L'ambiguïté dans son statut réside dans le fait qu'il est impossible de savoir si le besoin de régénération — donc *a priori* de RNR — est avéré. Si ce n'est pas le cas, l'enjeu est de limiter le plus possible l'inventaire de plutonium, étant l'élément le plus radiotoxique du cycle. Mais si c'est le cas, alors il faut augmenter l'inventaire le plus rapidement possible afin de permettre la transition vers un parc RNR, demandant entre 1200 et 1500 tonnes pour le démarrer. [61]. Enfin, cette ambiguïté est exacerbée par le fait que 30 ans ne seront probablement pas suffisants pour constituer un tel inventaire ni même si un parc de RNR à l'échelle industrielle sera prêt d'ici là. Des stratégies de multirecyclage du plutonium ex-MOX sont possibles avec notamment le déploiement de nouveaux combustibles tels que les MIX [62] ou le MOX-MR [49] mais ce dernier, par exemple, n'est pas pérenne donc ne permet que de gagner du temps et de piloter les entreposages tout en repoussant le sujet.

1.4.3 L'objectif de cette thèse : l'incinération des transuraniens

En physique nucléaire, la **transmutation** est la transformation d'un nucléide en un autre par réaction nucléaire [63]. La transmutation des produits de fission vise à transformer un noyau radioactif à vie longue en un autre à vie plus courte, voire stable, par capture d'un neutron. Cela pourrait se faire en pratique par l'introduction de ces PF dans des réacteurs afin de capturer des neutrons. Mais étant donné les quantités concernées ainsi que la cinétique très lente de ce procédé d'une part, et la compétition entre la disparition de ces PF par transmutation et leur production dans les réacteurs équilibrant l'inventaire à un stock non nul d'autre part, cette stratégie n'est aujourd'hui plus considérée.

Seule la transmutation des actinides mineurs est encore envisagée. Il s'agit alors de faire fissionner ces noyaux après une ou plusieurs absorptions de neutrons. La mise en place de la transmutation des actinides mineurs dans un parc de réacteurs est aussi appelée stratégie d'**incinération**. Enfin, il est possible de parler de réacteurs incinérateurs par métonymie descendante bien qu'il s'agisse d'un abus de langage. L'incinération étant sémantiquement liée aux déchets, il est possible de rencontrer dans des communications d'industriels tels qu'Orano le terme de **conversion** lorsqu'il s'agit de l'incinération du plutonium. Ce terme pouvant prêter à confusion, en particulier au regard des étapes de conversion de l'uranium (voir section 1.3.3), il ne sera que très peu utilisé dans la suite de cette thèse et uniquement dans des situations s'y prêtant bien.

Aujourd'hui, les AM sont les déchets avec le plus d'impact en termes de durée de radiotoxicité et d'empreinte au stockage. Il paraît intéressant de considérer la mise en place d'une stratégie de transmutation de ces AM et en particulier de l'américium, majoritaire dans les CU REP. Mais cette stratégie n'a de sens que si la gestion du plutonium est déjà effective [61]. La gestion de l'américium — trouver un exutoire à l'américium pour le transmuter dans le cycle — est intrinsèquement liée avec celle du plutonium et du contexte associé au parc de réacteurs. Il est possible de remarquer deux stratégies qui ont structuré les réflexions venues avec le retour à la fin des années 2010 de deux acteurs industriels dans l'intérêt porté aux RSF par le CNRS depuis une vingtaine d'années : Orano [27] et le CEA [64].

D'une part, le plutonium est géré dans un parc de réacteurs de IV^e génération — des RNR-Na dans la stratégie officielle — et/ou dans les REP avec le projet MRREP. Ces stratégies produisent de l'américium qui est alors transmuté dans un parc d'incinérateurs — ici, des RSF. Cela a donné lieu notamment au lancement du projet national ISAC en 2022 — successeur du projet ARAMIS-P entre le CEA et Orano — piloté par le CEA et dans lequel sont présents le CNRS, EDF, Framatome et le CEA et qui est présenté dans la section 2.3.3.2.

D'autre part, si les RNR-Na ne sont pas déployés pour gérer le plutonium et que le multirecyclage en REP n'est pas mis en œuvre, alors les RSF peuvent gérer conjointement le plutonium et l'américium. C'était l'intérêt d'Orano avec l'étude dans un premier temps de RSF « convertisseurs » de plutonium en partenariat avec le CNRS, puis dans un second temps sous l'impulsion de ce dernier, de RSF incinérateurs de plutonium et d'actinides mineurs [27]. Cette stratégie a donné lieu au projet européen MIMOSA en 2022, piloté par Orano et dans lequel le CNRS est présent et qui est présenté dans la section 2.3.3.2.

La présente thèse s'inscrit dans le cadre de ces deux projets complémentaires dans la perspective de l'utilisation de RSF incinérateurs pour la fermeture du cycle du combustible : un parc d'incinérateurs complémentaire au parc de REP et de RNR-Na dans le cadre du projet ISAC ou alors un parc d'incinérateurs se substituant aux gestions évoquées précédemment pour la gestion du plutonium puis des actinides mineurs dans le cadre du projet MIMOSA.

💡 À retenir (1.4)

Les volontés politiques en 2025 sont de prolonger le parc de réacteurs déjà existant tout en construisant de nouveaux réacteurs de type EPR2. La filière travaille par ailleurs sur une feuille de route pour permettre la fermeture du cycle avec des RNR-Na. De nouveaux acteurs ont fait leur apparition dans les dernières années avec notamment des *start-up* projetant la construction de petits réacteurs modulaires.

En France, un déchet nucléaire est légalement une substance radioactive dont aucune utilisation n'est prévue ou envisagée. Les réacteurs à eau actuels produisent deux types de déchets de haute activité principaux : les AM et les PF. Il pourrait être intéressant d'incinérer les AM pour valoriser leur potentiel énergétique et produire des PF, déchets ultimes de la fission, moins radiotoxiques moins longtemps. Mais la gestion des AM ne sera bénéfique pour le cycle que si le plutonium est déjà géré. L'objectif de cette thèse est l'étude de la transmutation et de l'incinération du plutonium et des AM dans des réacteurs rapides à sels fondus au sein des deux projets ISAC et MIMOSA apportant une vision différente et complémentaire de la stratégie de gestion du plutonium historique dans les RNR-Na.

Conclusion du chapitre

Ce premier chapitre a présenté le contexte climatique et énergétique mondial en ce début du XXI^e siècle et a rappelé que l'énergie nucléaire est une alliée dans la lutte contre l'émission de gaz à effet de serre. Cette énergie récente, ayant émergé au cours du siècle dernier, est largement utilisée par la France pour sa production d'électricité. Les notions de physique nucléaire, de physique des réacteurs et de neutronique présentées, complétées avec les notions de chimie abordées dans le chapitre 2, sont essentielles pour comprendre le fonctionnement des outils d'étude et de calculs numériques présentés dans les chapitres 3 et 4 et utilisés dans les chapitres 5 et 6. Enfin, la présentation du parc de réacteurs français et du cycle du combustible associé pose le cadre du cas d'application de l'étude d'impact du déploiement des RSF, ces études de scénarios étant présentés dans le chapitre 6.

Well, where are we gonna get that much salt?

Nancy Wheeler, *Stranger Things*

2

Les réacteurs à sels fondus

Sommaire

<i>Introduction du chapitre</i>	41
2.1 Éléments de chimie des sels fondus	41
2.1.1 Nature des sels fondus	41
2.1.2 Types de sels utilisés	41
2.1.3 Propriétés physico-chimiques déterminantes	44
2.2 Principe de fonctionnement et tour d'horizon des différentes familles de RSF	48
2.2.1 Un réacteur à combustible liquide	48
2.2.2 Alimentation et traitement	50
2.2.3 Un réacteur polyvalent, multiphysique et multiéchelle	54
2.3 Historique et projets français et internationaux	56
2.3.1 De l'armée américaine à EDF	56
2.3.2 Un réacteur de IV ^e génération à l'aube du XXI ^e siècle	58
2.3.3 Un puissant regain d'intérêt	61
2.4 Concepts de réacteurs à sels fondus étudiés dans cette thèse	65
2.4.1 Le MSFR de référence : un réacteur grenoblois	65
2.4.2 RAPTOR : un incinérateur de plutonium et de transuraniens	65
2.4.3 ARAMIS-A : pour gérer l'américium d'un parc de RNR-Na français	67
<i>Conclusion du chapitre</i>	68

Figures

2.1 Spectres typiques d'un réacteur à sels fluorures et à sels chlorures	42
2.2 Diagramme de phase du système NaCl – PuCl ₃	43
2.3 Diagramme ternaire NaCl – MgCl ₂ – PuCl ₃ avec la ligne eutectique mise en évidence	44
2.4 Diagrammes de prédominance de l'uranium et du plutonium dans un sel chlorure à base NaCl et le sel NaCl – UCl ₃ – PuCl ₃ (80-10-10 %mol) à 600 °C	46
2.5 Détermination de l'état et de la valence d'un élément	48
2.6 Schéma de principe du traitement des sels chlorures NaCl – AnCl ₃	51
2.7 Comparaison de potentiels standards rédox d'actinides et du magnésium	52
2.8 Mise à jour du schéma de traitement pour les sels NaCl – MgCl ₂ – AnCl ₃	53
2.9 Taxonomie des différentes familles de RSF	55

2.10	Visualisation multiéchelle des champs d'études sur les réacteurs à sels fondus présentés dans cette thèse	55
2.11	Le Convair NB-36H en vol	56
2.12	Photographie du cœur, des pompes et de l'échangeur de chaleur du MSRE	57
2.13	Vue conceptuelle du MSBR	58
2.14	Les six concepts retenus par le GIF	59
2.15	Principe de fonctionnement d'un RNR-Na	60
2.16	Historique des projets, des réacteurs, des thèses et des HDR au sein de l'équipe MSFR	62
2.17	Logos des projets ISAC et MIMOSA	62
2.18	Évolution de la fréquence d'occurrence des variations orthographiques et de casse de « RSF » dans les sources imprimées en langue française entre 1950 et 2022	64
2.19	Illustration du MSFR de référence	64
2.20	Illustration d'un RAPTOR	65
2.21	Organisation des travaux de thèse au sein du projet MIMOSA autour du RAPTOR	66
2.22	Vue conceptuelle d'ARAMIS-A V1.5	66
2.23	Organisation des travaux de thèse au sein du projet ISAC	67

Tableaux

2.1	Différences entre les sels fluorures et les sels chlorures	42
2.2	Rayons ioniques des éléments	45
2.3	Tableau des valences des éléments d'un sel chlorure avec un potentiel de -1,5V	47
2.4	Schéma d'extraction mis au point pour le projet MIMOSA	53

Introduction du chapitre

Pour étudier les réacteurs à sels fondus incinérateurs d'actinide mineur à combustible liquide circulant, la compréhension du comportement global du combustible liquide présent dans ce type de réacteur, sensiblement différent des réacteurs à combustible solide, nécessite d'appréhender différents éléments de chimie des sels fondus. La première partie de ce chapitre (2.1) introduit ainsi quelques notions de chimie des sels fondus qui, en complément des notions de neutronique introduits dans le chapitre 1, permettent de connaître les principales propriétés des sels au cœur de cette thèse. Ensuite, une deuxième partie (2.2) évoque le principe de fonctionnement de ces réacteurs à combustible liquide, leur zoologie et toutes les implications sur l'isotopie du sel, ceci se répercutant sur les stratégies d'alimentation, d'extraction et de traitement. Ce *focus* est une occasion pour présenter les derniers travaux réalisés sur ces schémas tout au long de cette thèse. La troisième partie (2.3) commence avec une approche historique des premiers projets réalisés au xx^e siècle, puis la présentation du GIF, de la définition de la IV^e génération de réacteurs nucléaires et enfin les différents projets RSF français et européens dans lesquels le CNRS est impliqué. Le chapitre se conclut (2.4) en parlant plus spécifiquement des projets ISAC et MIMOSA, cadre de la thèse, et des concepts de RSF au cœur de ces projets.

2.1 Éléments de chimie des sels fondus

2.1.1 Nature des sels fondus

Un sel fondu est un composé ionique porté à suffisamment haute température (au-delà de 500 °C) pour être liquide. Il s'agit d'une solution non-aqueuse, le solvant étant lui-même un sel [65]. Les sels fondus sont constitués d'ions mobiles – cations et anions – formant un liquide dense à très bonne capacité thermique. Les sels fondus qui sont proposés pour les RSF ont une faible pression de vapeur – ce qui rend inutiles des équipements prévus pour la haute pression – et une bonne stabilité thermique et chimique à haute température.

Les sels fondus sont utilisés dans l'industrie pour leur capacité thermique [66], que cela soit en tant que fluide caloporteur ou pour du stockage thermique de l'énergie, notamment dans des centrales solaires à concentration. Ils sont utilisés pour leurs propriétés ioniques dans des techniques électrochimiques (électrolyse de l'aluminium). Enfin, les sels fondus sont utilisés dans des procédés de traitement thermique en bain de sel.

Mais l'intérêt principal porté aux sels fondus dans le cadre de ce travail est l'utilisation comme caloporteur et comme combustible liquide, c'est-à-dire comme solvant des actinides et de leurs produits de fission.

2.1.2 Types de sels utilisés

2.1.2.1 Fluorures et chlorures

Les sels étudiés dans le contexte des RSF peuvent se décliner en deux catégories en fonction du solvant utilisé : les sels fluorures avec LiF comme solvant et les sels chlorures avec NaCl. Historiquement, les premiers réacteurs construits et étudiés étaient en sels fluorures mais aujourd'hui, les deux types sont étudiés. Le libre parcours moyen des neutrons est plus faible dans les sels fluorures : les sels chlorures sont plus « transparents » aux neutrons [67]. De plus, l'isotope principal du fluor, le ¹⁹F, a de larges résonances de diffusion élastique qui ont pour effet d'adoucir le spectre. La figure 2.1 montre un spectre typique de réacteurs fluorures et chlorures. Les principales résonances caractéristiques de ces spectres sont indiquées avec notamment celles du ¹⁹F, du ³⁷Cl ainsi que la résonance principale du ²³Na.

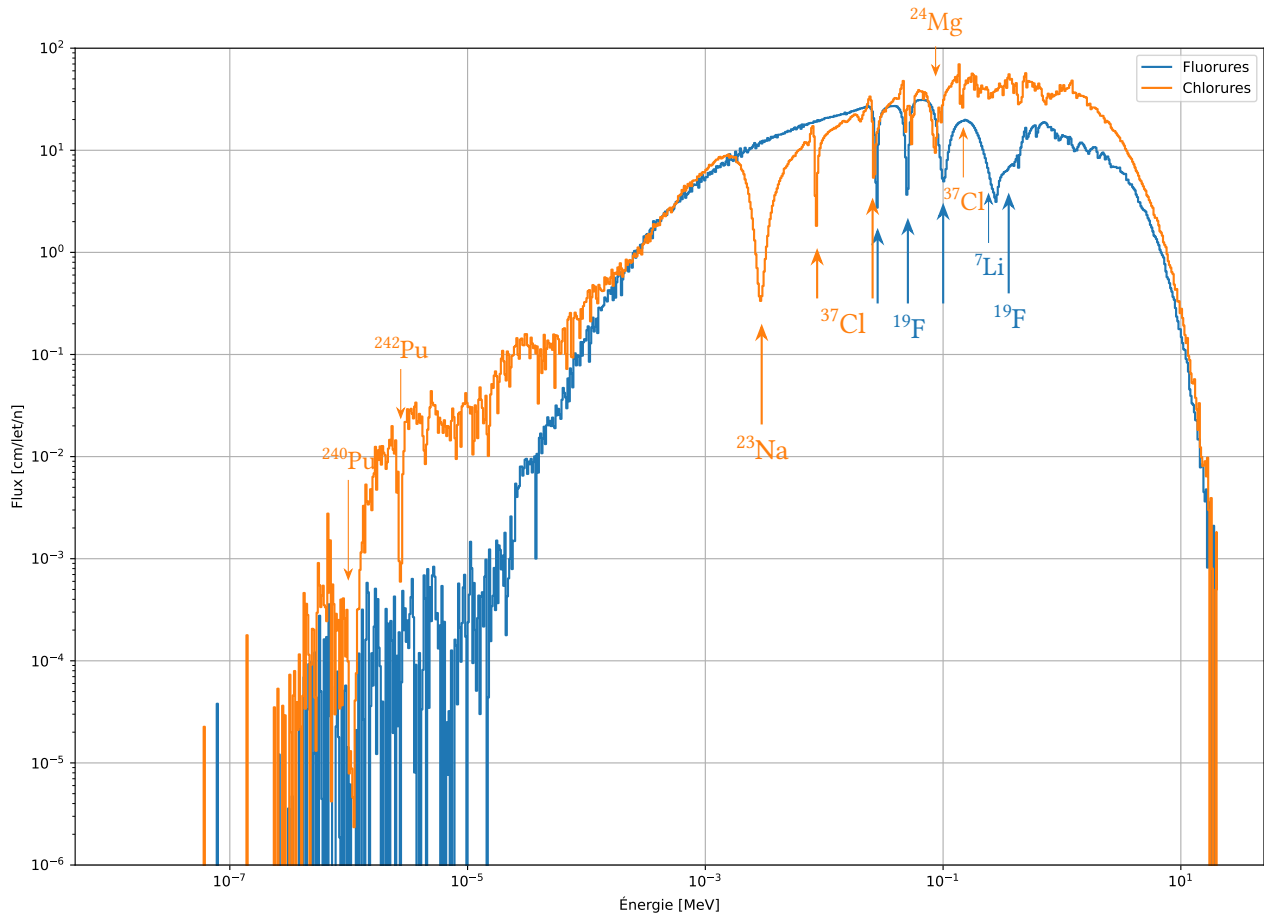


FIGURE 2.1 – Spectres typiques d'un réacteur à sels fluorures et à sels chlorures

Il est ainsi possible de voir qu'un spectre fluorure est légèrement moins rapide qu'un spectre chlorure avec un maximum entre 10 et 100 keV pour les fluorures et entre 100 keV et 1 MeV pour les chlorures. Couplé à la transparence plus faible, cela a pour conséquence de réduire les dommages d'irradiation sur les matériaux de structure dans les réacteurs à sels fluorures. Cependant, seul le cycle Th/U est compatible avec les sels fluorures pour un réacteur régénérateur puisque les autres cycles nécessitent des spectres plus rapides. La solubilité du plutonium en sels fluorures, en revanche, est bien plus faible qu'en sels chlorures. Ces principales propriétés thermodynamiques sont comparées dans le tableau 2.1.

Propriété	Fluorures	Chlorure
Solubilité du Pu	Plus faible	Plus élevée
Speçtre	Moins rapide que les chlorures	Plus rapide
Cycles de régénération	Th/U	Th/U, U/Pu, Am/Pu-Am
Dommages d'irradiation	Plus faibles	Bien plus élevés que les fluorures
Température de fonctionnement	Plus haute que les chlorures	Plus basse que les fluorures
Thermodynamique	ρC_P plus élevé	ρC_P plus faible

TABEAU 2.1 – Différences entre les sels fluorures et les sels chlorures

Ainsi, les gros réacteurs surgénérateurs — en particulier sur cycle Th/U — sont plutôt étudiés avec des sels fluorures et inversement, les petits réacteurs incinérateurs tels que ceux étudiés dans cette thèse le sont avec des sels chlorures.

2.1.2.2 Des sels ternaires

Un sel constitué du mélange de plusieurs corps purs va posséder des propriétés physicochimiques différentes de celles de ses constituants considérés séparément. Ces corps composés peuvent notamment présenter des transitions liquide-solide différentes, visibles sur des diagrammes de phase. La figure 2.2 montre le diagramme binaire du système composé des deux espèces NaCl et PuCl₃ [68, 69], L symbolisant une phase liquide.

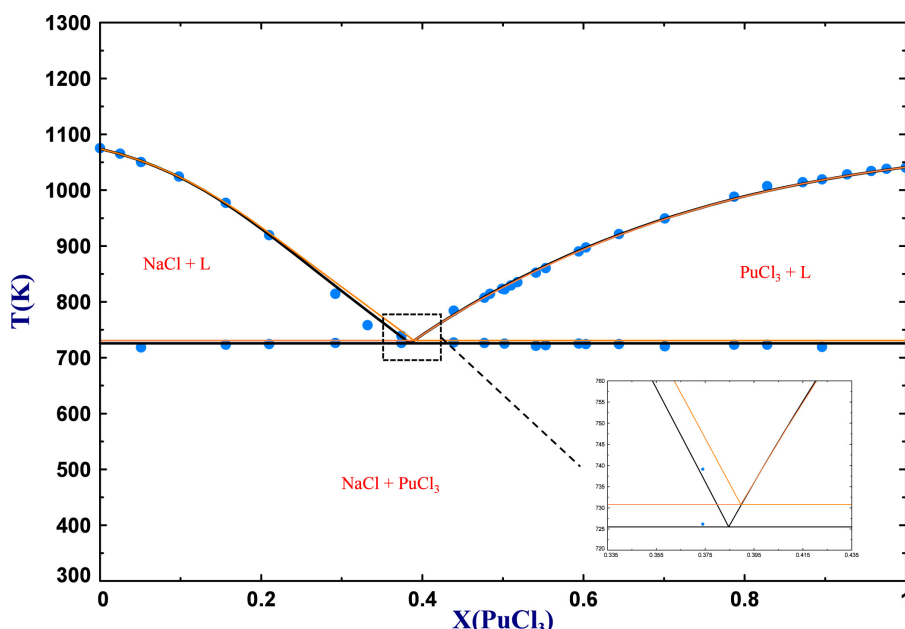


FIGURE 2.2 – Diagramme de phase du système NaCl–PuCl₃ provenant de [68] avec, en orange, les valeurs provenant de [69]

Les espèces pures se liquéfient à température fixée et de manière homogène (le liquide a la même composition que le solide). Le système binaire va voir sa température de fusion baisser mais celle-ci ne sera pas homogène, sauf pour la composition à l'**eutectique**. L'eutectique est le point de fusion à la température la plus basse, illustré dans l'encadré de la figure 2.2 et correspondant au mélange 0.615 NaCl–0.385 PuCl₃ à 725 K avec les données issues de [68]. L'eutectique correspond en outre à la composition dans laquelle le mélange se solidifie de manière uniforme : un changement de température dans une composition hors eutectique va voir évoluer la proportion de phase solide par rapport à celle liquide.

En ajoutant un troisième sel, cela donne un sel ternaire. La figure 2.3 montre le diagramme ternaire du système NaCl–MgCl₂–PuCl₃ avec la ligne eutectique (par l'ajout d'une dimension) de température de fusion minimale mise en évidence en rouge [69]. Le diagramme binaire orange de la figure 2.2 se retrouve ainsi projeté sur le côté droit du diagramme ternaire de la figure 2.3 avec le point eutectique à 726 K.

Ces diagrammes permettent de déterminer les compositions initiales des réacteurs à sels fondus étudiés : cette composition se situe idéalement sur la ligne eutectique pour des raisons de sureté — permettant une solidification homogène du sel en cas de refroidissement — et le paramètre libre à déterminer est la proportion de matière fissile pour la criticité. Les sels ternaires utilisés dans le cadre de cette thèse sont :

- LiF–ThF₄–UF₃ ;
- NaCl–MgCl₂–PuCl₃ ;
- NaCl–ThCl₄–PuCl₃.

Un sel quaternaire NaCl–MgCl₂–PuCl₃–AmCl₃ est également au cœur d'un des concepts étudiés mais le comportement de l'américium est considéré comme celui du plutonium, ramenant ce système à un sel ternaire.

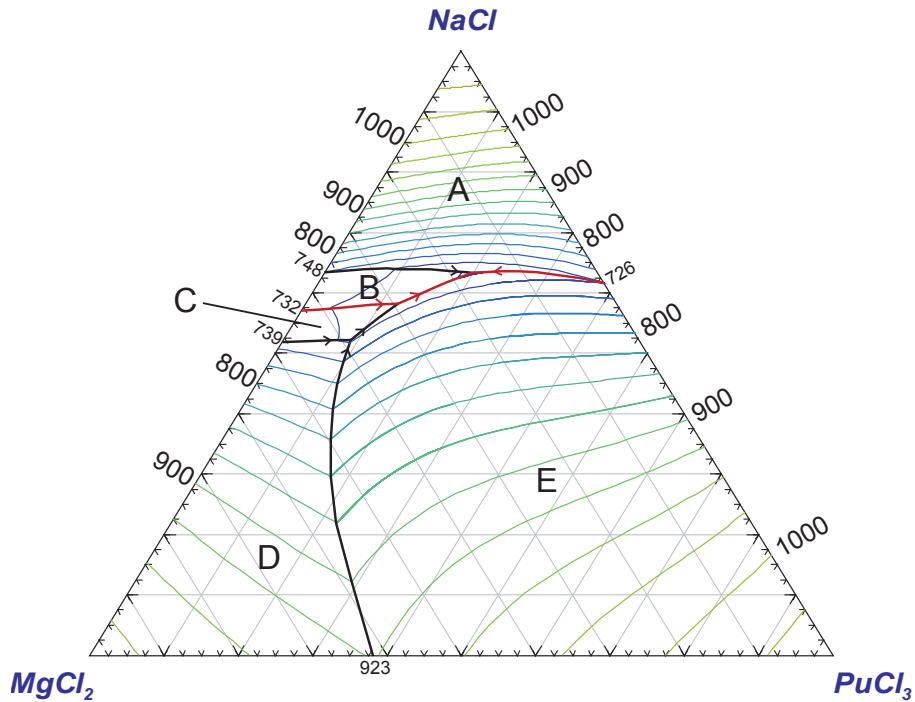


FIGURE 2.3 – Diagramme ternaire NaCl–MgCl₂–PuCl₃ avec la ligne eutectique mise en évidence [69]

2.1.3 Propriétés physico-chimiques déterminantes

2.1.3.1 Densité ou masse volumique

La masse volumique des matériaux, exprimée en g/cm³ et appelée également densité par abus de langage, est une grandeur essentielle en neutronique et il est donc nécessaire de déterminer correctement celle du sel étudié. Cette masse volumique dépend de la température de fonctionnement et de la composition du sel. Les lois de densité de certaines espèces pures — comme LiF ou NaCl — sont bien connues et documentées [70, 71] ainsi que les lois de certaines espèces composées, comme par exemple 0,64 NaCl–0,36 PuCl₃. Le calcul de la densité d'un sel ternaire peut se faire de plusieurs manières, par mélange de sels purs ou de sels composés. Chaque sel présenté au cours de ces travaux sera accompagné de sa densité et de sa température associée.

2.1.3.2 Volume ionique

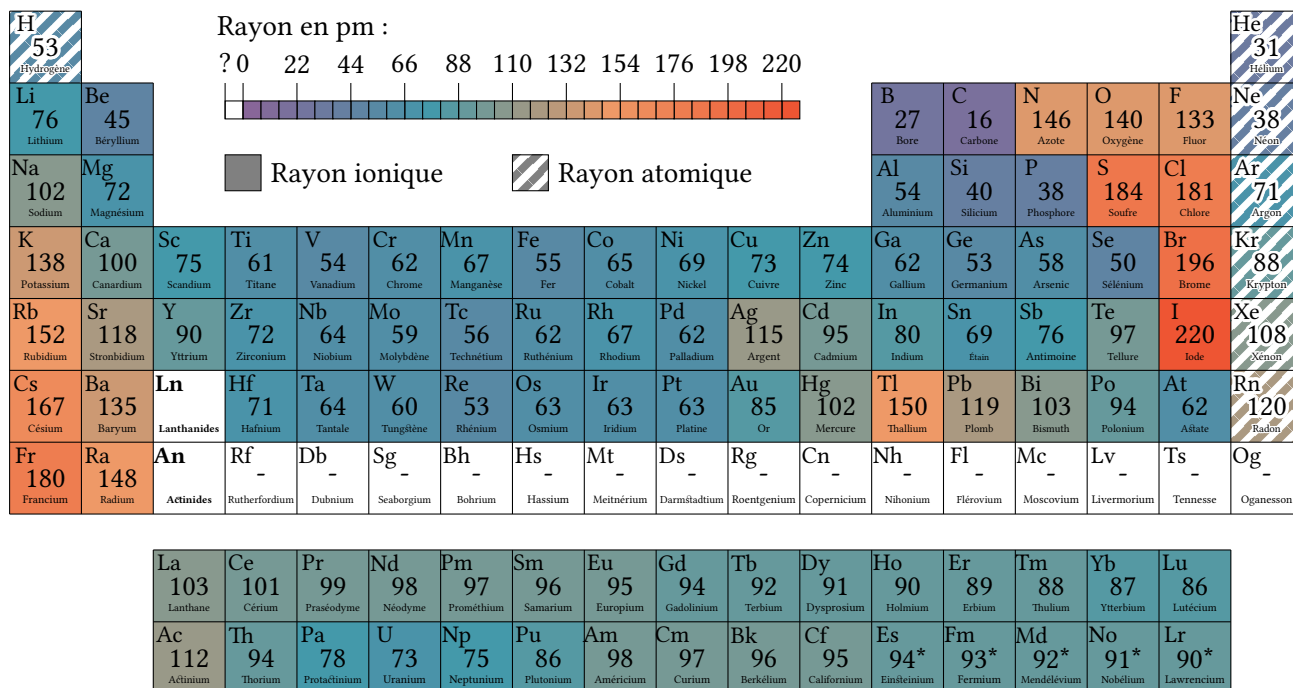
Connaitre le volume de sel dans un système alors que sa composition évolue est un enjeu fort pour pouvoir simuler des RSF mais son calcul n'est pas trivial. En divisant la masse d'une quantité de sel par sa densité, il est possible de calculer son volume — en supposant que la densité déterminée ci-dessus n'est pas trop imprécise. Ce volume augmente avec la température du sel du fait de la diminution de la densité mais évolue également avec la composition du sel (voir section 4.2.1). En l'absence de données disponibles, un modèle simple et applicable à toutes les compositions de combustible liquide est utilisé pour calculer cet effet.

Les sels étant des liquides ioniques, chaque anion et chaque cation peut être modélisé par une boule ayant un rayon. Ce rayon ionique caractérise le volume occupé par les électrons du nuage électronique [72]. Le tableau 2.2 montre le rayon ionique des éléments chimiques tels qu'utilisés dans la suite de ces travaux. Il est à noter que les gaz nobles, étant non ionisés, n'ont pas de rayons ioniques et donc le rayon atomique est utilisé en remplacement.

La connaissance des rayons ioniques permet d'estimer le volume d'un sel en faisant l'hypothèse que les ions sont des boules — il est donc calculé le volume des boules, formule (2.1), qu'il est nécessaire de pondérer d'un coefficient tenant compte des espaces entre les boules, eux-mêmes dépendant de la température du sel.

$$V_{\text{ionique}} = \frac{4}{3}\pi \sum_i r_i^3 N_i \times \text{coefficient} \quad (2.1)$$

Ce calcul et ses applications sont explicités dans la section 4.2.2.1.



*valeurs extrapolées

TABLEAU 2.2 – Rayons ioniques des éléments provenant de [72], en pm

2.1.3.3 Oxoacidité

Le comportement des différents éléments dans le sel dépend de l'oxoacidité de celui-ci. L'oxoacidité est une définition de l'acidité adaptée aux milieux non aqueux, comme les sels fondus, fondée sur l'échange d'ions O^{2-} en lieu et place des ions H^+ [65]. Contrairement aux acides, donneurs d'ions H^+ , les oxoacides sont des espèces acceptrices d'ions O^{2-} : les rôles entre oxoacide et oxobase sont ainsi inversés par rapport aux rôles entre acide et base, comme l'illustre l'équation (2.2).



Pour mesurer l'oxoacidité d'un sel fondu dans lequel des ions O^{2-} circulent librement, une grandeur analogue au pH est définie à partir du cologarisme de l'activité des ions O^{2-} , notée $a_{O^{2-}}$ dans la formule (2.3) [65, 73] :

$$pO^{2-} = -\log a_{O^{2-}} \quad (2.3)$$

Il est à noter que, contrairement au pH, plus le pO^{2-} est élevé, plus le sel est oxoacide. L'activité $a_{O^{2-}}$ peut se calculer arbitrairement avec le coefficient d'activité multiplié par la concentration en ions O^{2-} ou alors par la variation d'enthalpie libre partielle $G_{O^{2-}}$, voir équation (2.4) avec R la constante universelle des gaz parfaits et T la température, correspondant ¹ à la variation de composition en ions O^{2-} [74].

$$G_{O^{2-}} = G_{O^{2-}}^{\circ} + RT \ln a_{O^{2-}} \quad (2.4)$$

1. « Il ne faut pas chercher à l'interpréter. » – Michel Allibert

Un sel oxoacide va ainsi concentrer les anions : un sel chlorure oxoacide, par exemple, va ainsi concentrer² les ions Cl^- . Par exemple, dans le cas du plutonium dans un sel chlorure :

- avec un pO^{2-} faible (sel oxobasique), le plutonium va **précipiter** en formant des espèces insolubles comme par exemple PuO_2 , Pu_2O_3 ou PuOCl [73] ;
- avec un pO^{2-} élevé (sel oxoacide), le plutonium va se **solubiliser** et ses oxydes vont se dissocier en PuCl_3 et en O^{2-} [73].

Il est ainsi nécessaire de fixer l'oxoacidité d'un sel, avec par exemple des capteurs d'oxydes comme l'aluminium sous forme d' Al_2O_3 , afin de limiter la précipitation des actinides [75]. De plus, dans un sel oxoacide, les diagrammes thermodynamiques et expérimentaux sont proches puisque les effets de solvatation sont atténués [65, 75]. Au sein du projet ISAC, présenté section 2.3.3.2, le pO^{2-} est fixé à 35.

2.1.3.4 Potentiel d'oxydoréduction et états d'oxydation

Il est important de connaître la forme chimique de chaque élément présent dans le sel pour dimensionner les usines d'extraction des produits de fission. Et pour cela, il est nécessaire de connaître son degré d'oxydation. Pour chaque élément, il est possible d'écrire un équilibre d'oxydoréduction entre une espèce oxydée et une espèce réduite, voir équation 2.5.



Cet équilibre est caractérisé, pour un couple oxydant/réducteur seul, par la loi de Nernst (2.6) avec E le potentiel d'oxydoréduction du couple et F la constante de Faraday.

$$E = E^\circ - \frac{RT}{nF} \ln \frac{a_{\text{Réd}}}{a_{\text{Ox}}} \quad (2.6)$$

La connaissance du potentiel d'oxydoréduction, ajoutée à celle de l'oxoacidité, permet de tracer des diagrammes de prédominance E/pO^{2-} permettant d'identifier l'état d'oxydation et la forme chimique d'un élément en fonction de ces deux grandeurs [76]. Ces diagrammes sont tracés avec les espèces dans leur état standard, c'est-à-dire avec une activité unitaire. Dans des cas plus réalistes, en particulier avec des activités très faibles correspondant à de faibles teneurs en plutonium ou en uranium dans le combustible, les lignes seraient décalées parallèlement aux lignes figurant dans les diagrammes ci-dessous. La figure 2.4 montre les diagrammes thermodynamiques de l'uranium et du plutonium dans un sel chlorure [77]. Il est possible de distinguer les zones de potentiel et de pO^{2-} dans lesquels ces deux éléments se trouvent sous forme de sel, l'image de droite montrant ainsi en orange la zone commune. Les abscisses, exprimées en pNa_2O , sont équivalentes à un pO^{2-} puisque Na_2O est un sel oxobasique parfait s'ionisant complètement en Na^+ et en O^{2-} .

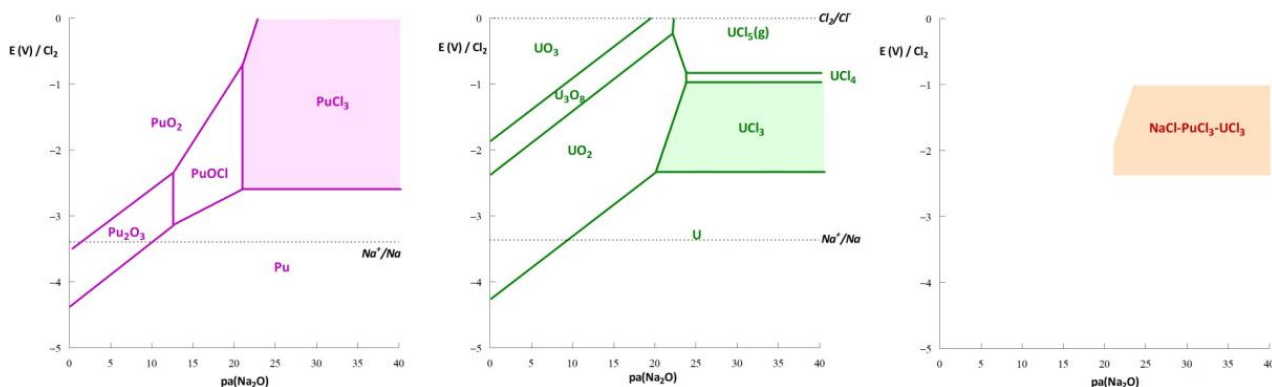


FIGURE 2.4 – Diagrammes de prédominance du plutonium (à gauche) et de l'uranium (au milieu) dans un sel chlorure à base NaCl et le sel $\text{NaCl}-\text{UCl}_3-\text{PuCl}_3$ (80-10-10 %mol) (à droite) à 600 °C [77]

2. « Il va pomper les chlorures. » – Sylvie Delpech

Il existe différents moyens de fixer le potentiel chimique comme par exemple avec l'aide d'une espèce tampon (l'uranium pouvant se trouver dans l'état UCl_3 ou UCl_4 en fonction du potentiel) ou avec une électrode plongée dans le sel (anode sacrificielle en aluminium). Le potentiel fixé dans les calculs ayant eu lieu dans le cadre du projet SAMOSAFER (et repris dans le cadre du projet MIMOSA) est de $-1,5$ V tandis que le potentiel fixé dans le cadre du projet ISAC est de -2 V.

2.1.3.5 Valence et électroneutralité

En plus de leur forme chimique, les diagrammes $E/p\text{O}^{2-}$ permettent d'identifier l'état d'oxydation d'un élément – donc sa valence – soit le nombre d'anions avec lesquels il va se lier. Par exemple, dans les conditions identifiées par la figure 2.4, l'uranium et le plutonium sont sous forme d' UCl_3 et de PuCl_3 . Chaque élément formant trois liaisons ioniques avec le chlore, ces deux éléments sont de valence 3. Le tableau 2.3 présente les valences des éléments dans des chlorures identifiées avec un potentiel de $-1,5$ V et un $p\text{O}^{2-}$ de 35 [75].


Valence																																															
																																															
1 H Hydrogène																	2 He Hélium																														
3 Li Lithium	4 Be Béryllium															5 B Bore	6 C Carbone	7 N Azote	8 O Oxygène	9 F Fluor	10 Ne Néon																										
11 Na Sodium	12 Mg Magnésium															13 Al Aluminium	14 Si Silicium	15 P Phosphore	16 S Soufre	17 Cl Chlore	18 Ar Argon																										
19 K Potassium	20 Ca Calcium	21 Sc Scandium	22 Ti Titane	23 V Vanadium	24 Cr Chrome	25 Mn Manganèse	26 Fe Fer	27 Co Cobalt	28 Ni Nickel	29 Cu Cuivre	30 Zn Zinc	31 Ga Gallium	32 Ge Germanium	33 As Arsenic	34 Se Sélénium	35 Br Brome	36 Kr Krypton																														
37 Rb Rubidium	38 Sr Strontium	39 Y Yttrium	40 Zr Zirconium	41 Nb Niobium	42 Mo Molybdène	43 Tc Technétium	44 Ru Ruthénium	45 Rh Rhodium	46 Pd Palladium	47 Ag Argent	48 Cd Cadmium	49 In Indium	50 Sn Étain	51 Sb Antimoine	52 Te Tellure	53 I Iode	54 Xe Xénon																														
55 Cs Césium	56 Ba Baryum	Ln Lanthanides	72 Hf Hafnium	73 Ta Tantale	74 W Tungstène	75 Re Rhenium	76 Os Osmium	77 Ir Iridium	78 Pt Platine	79 Au Or	80 Hg Mercure	81 Tl Thallium	82 Pb Plomb	83 Bi Bismuth	84 Po Polonium	85 At Astate	86 Rn Radon																														
87 Fr Francium	88 Ra Radium	An Actinides	104 Rf Rutherfordium	105 Db Dubnium	106 Sg Seaborgium	107 Bh Bohrium	108 Hs Hassium	109 Mt Meitnerium	110 Ds Darmstadtium	111 Rg Roentgenium	112 Cn Copernicium	113 Nh Nihonium	114 Fl Flerovium	115 Mc Moscovium	116 Lv Livermorium	117 Ts Tennessé	118 Og Oganesson																														
<table border="1"> <tbody> <tr> <td>57 La Lanthane</td> <td>58 Ce Cérium</td> <td>59 Pr Praséodyme</td> <td>60 Nd Néodyme</td> <td>61 Pm Prométhium</td> <td>62 Sm Samarium</td> <td>63 Eu Europium</td> <td>64 Gd Gadolinium</td> <td>65 Tb Terbium</td> <td>66 Dy Dysprosium</td> <td>67 Ho Holmium</td> <td>68 Er Erbium</td> <td>69 Tm Thulium</td> <td>70 Yb Ytterbium</td> <td>71 Lu Lutécium</td> </tr> <tr> <td>89 Ac Actinium</td> <td>90 Th Thorium</td> <td>91 Pa Protactinium</td> <td>92 U Uranium</td> <td>93 Np Neptunium</td> <td>94 Pu Plutonium</td> <td>95 Am Américium</td> <td>96 Cm Curium</td> <td>97 Bk Berkélium</td> <td>98 Cf Californium</td> <td>99 Es Einsteinium</td> <td>100 Fm Fermium</td> <td>101 Md Mendélévium</td> <td>102 No Nobelium</td> <td>103 Lr Lawrencium</td> </tr> </tbody> </table>																		57 La Lanthane	58 Ce Cérium	59 Pr Praséodyme	60 Nd Néodyme	61 Pm Prométhium	62 Sm Samarium	63 Eu Europium	64 Gd Gadolinium	65 Tb Terbium	66 Dy Dysprosium	67 Ho Holmium	68 Er Erbium	69 Tm Thulium	70 Yb Ytterbium	71 Lu Lutécium	89 Ac Actinium	90 Th Thorium	91 Pa Protactinium	92 U Uranium	93 Np Neptunium	94 Pu Plutonium	95 Am Américium	96 Cm Curium	97 Bk Berkélium	98 Cf Californium	99 Es Einsteinium	100 Fm Fermium	101 Md Mendélévium	102 No Nobelium	103 Lr Lawrencium
57 La Lanthane	58 Ce Cérium	59 Pr Praséodyme	60 Nd Néodyme	61 Pm Prométhium	62 Sm Samarium	63 Eu Europium	64 Gd Gadolinium	65 Tb Terbium	66 Dy Dysprosium	67 Ho Holmium	68 Er Erbium	69 Tm Thulium	70 Yb Ytterbium	71 Lu Lutécium																																	
89 Ac Actinium	90 Th Thorium	91 Pa Protactinium	92 U Uranium	93 Np Neptunium	94 Pu Plutonium	95 Am Américium	96 Cm Curium	97 Bk Berkélium	98 Cf Californium	99 Es Einsteinium	100 Fm Fermium	101 Md Mendélévium	102 No Nobelium	103 Lr Lawrencium																																	

TABLEAU 2.3 – Tableau des valences des éléments d'un sel chlorure avec un potentiel de $-1,5$ V [75]

Ainsi, pour une configuration de réacteur et la composition de son sel fixées, il est nécessaire de fixer un potentiel E et une oxoacidité $p\text{O}^{2-}$ afin d'avoir un point de fonctionnement qui, dans un diagramme thermodynamique, renseigne sur l'état d'un élément chimique (liquide ou insoluble) ainsi que sa valence. La figure 2.5 schématise cette méthodologie pour un métal M quelconque.

Les sels, comme les tous composés chimiques, sont électriquement neutres. Les cations, de charges positives, compensent les charges négatives. La charge d'un ion est assimilée à sa valence, précisée dans le tableau 2.3 : ainsi, l'oxygène de valence 2 se présente sous la forme d'ions O^{2-} et le plutonium de valence 3 se présente sous la forme d'ions Pu^{3+} . Dans les outils de simulation numérique présentés dans les chapitres 3 et 4, l'électroneutralité sera vérifiée par la somme des constituants pondérés par leurs valences, formule (2.7) avec N_i la proportion atomique de l'élément i et q_i sa charge assimilée à sa valence.

$$e = \sum_i N_i q_i \quad (2.7)$$

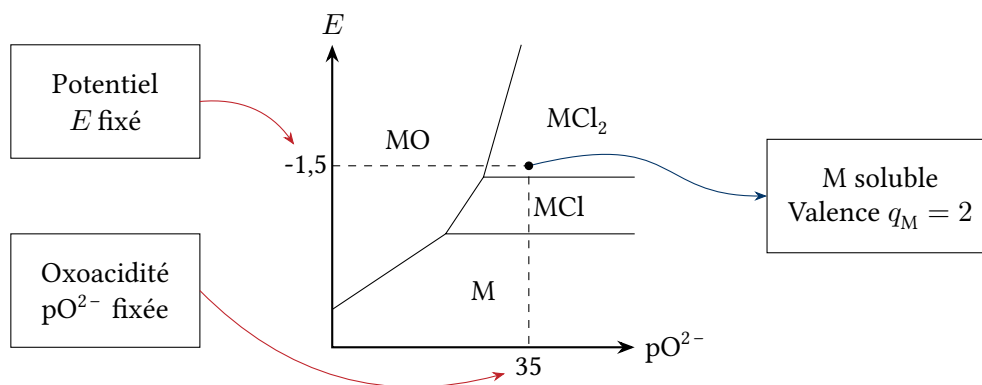


FIGURE 2.5 – Détermination de l'état et de la valence d'un élément

💡 À retenir (2.1)

Les sels fondus sont des liquides ioniques non-aqueux à base de fluorures ou de chlorures. Les sels chlorures utilisés dans le cadre de cette thèse se trouvent sur la ligne eutectique des ternaires NaCl – MgCl₂ – AnCl₃ ou NaCl – ThCl₄ – PuCl₃. Différentes propriétés physico-chimiques sont importantes à estimer pour la suite de ce travail comme la densité des sels, leur volume ionique, leur oxoacidité et leur potentiel rédox permettant de déterminer l'état chimique et la valence des éléments les constituant.

2.2 Principe de fonctionnement et tour d'horizon des différentes familles de RSF

2.2.1 Un réacteur à combustible liquide

2.2.1.1 Un combustible liquide ?

Dans la plupart des filières de réacteur nucléaire, le combustible est solide, généralement sous la forme d'oxyde UO₂ et est immergé dans le caloporteur, qui peut être de l'eau, légère ou lourde, liquide ou super-critique, du métal liquide comme du sodium ou du plomb ou encore du gaz comme de l'hélium ou du CO₂. Dans un réacteur nucléaire à sels fondus, le caloporteur est du sel fondu. Des différentes façons de découper les familles de RSF présentées dans la section 2.2.3, il est possible de faire à ce stade une dichotomie entre les réacteurs à combustible solide (immergé dans le sel fondu) ou à combustible liquide. Cette dernière catégorie est celle des réacteurs étudiés dans le cadre de cette thèse. Dans celle-ci, le combustible est dissout dans le sel, qui joue donc à la fois le rôle de caloporteur mais également de combustible.

Le combustible liquide circulant confère des propriétés assez différentes par rapport aux combustibles solides. L'une des plus remarquables est l'effet inverse dans la définition des états dégradés du réacteur : si un combustible solide ne doit pas fondre, à l'inverse, un combustible liquide ne doit pas se solidifier. D'autres différences notables sont intéressantes, en particulier à propos de l'homogénéité du combustible (section 2.2.1.2) ou de la possibilité de recharger et d'extraire le combustible « usé » pendant le fonctionnement du réacteur (section 2.2.2.3).

2.2.1.2 Philosophie de suivi de l'isotopie

Dans un réacteur à combustible solide, comme par exemple un REP, le combustible est introduit dans le cœur sous forme d'assemblages. Chaque assemblage d'un REP est suivi individuellement : si deux assemblages neufs d'un chargement n'ont *a priori* aucune raison d'avoir une isotopie différente, celle-ci va évoluer différemment en fonction du plan de chargement de l'assemblage dans le cœur. Ou encore, deux assemblages neufs avec la même isotopie mais chargés dans deux réacteurs différents vont être irradiés différemment. La différence d'irradiation peut se mesurer au travers du *burnup* (BU), aussi appelé combustion massique du combustible [63], exprimée en GW d/ t_{mli} et qui est l'énergie produite (GW d) par unité de masse de métal lourd initial (t_{mli}). Le *burnup* dans le cas d'un REP ou d'un RNR-Na évalue donc l'énergie extraite d'un combustible, assemblage par assemblage, dans ce type de réacteur. Il est également possible de suivre l'évolution du vecteur isotopique d'un assemblage combustible dans un réacteur à combustible solide. Cette évolution est également locale et non globale : un REP opéré avec une gestion par tiers possède des assemblages neufs, des assemblages irradiés au cours d'un cycle et des assemblages ayant fait deux cycles d'irradiation ; ces assemblages différents ont été irradiés à des BU différents et ont par conséquent des vecteurs isotopiques différents.

Dans le cas d'un réacteur à combustible liquide circulant comme les réacteurs à sels fondus objet de cette thèse, le combustible est supposé homogène en permanence étant donné qu'il est mélangé par turbulence. Cela a deux conséquences qu'il est nécessaire de prendre en compte lors des études présentées au cours de cette thèse :

- 1^e) D'une part, le cœur est considéré dans son ensemble : les simulations neutroniques considèrent toute la géométrie du réacteur. Les propriétés physico-chimiques du sel sont les mêmes en tout point du cœur par hypothèse : ainsi, l'isotopie du sel est homogène et est considérée pour l'ensemble du cœur.
- 2^e) D'autre part, et en corollaire du premier point, les grandeurs d'intérêt comme l'évolution de l'isotopie du combustible ou encore le flux neutronique sont considérées sur toute la durée de vie du réacteur. Étant donné que le rechargement du réacteur est réalisé par l'extraction d'une fraction du volume du sel et par l'ajout et la dilution de sel neuf, il n'est pas possible de définir un *burnup* comme celui des réacteurs à combustible solide, même si des définitions adaptées comme celle du taux d'incinération de la section 4.1.2.2 peuvent être proposées.

La philosophie de suivi de l'isotopie du combustible et des autres grandeurs d'intérêt utilisées dans le cadre de cette thèse est donc différente de celle des réacteurs à combustible solide : l'isotopie est la même quel que soit l'endroit du cœur et il n'est pas possible de suivre le *burnup* d'un combustible neuf chargé au sein du réacteur, celui-ci se retrouvant dilué parmi un sel ayant déjà subi de l'irradiation.

2.2.1.3 Enrichissement du chlore et du lithium

Le solvant majoritaire dans les sels fluorures est le LiF et les sels chlorures ont, par définition, de grandes quantités de chlore. Le lithium naturel possède deux isotopes : le ${}^6\text{Li}$ à 7,59 %_{mol} et le ${}^7\text{Li}$ à 92,41 %_{mol} tandis que le chlore naturel est composé de ${}^{35}\text{Cl}$ à 75,76 %_{mol} et de ${}^{37}\text{Cl}$ à 24,24 %_{mol}.

Les réacteurs à sels fluorures sont majoritairement simulés avec du lithium enrichi en ${}^7\text{Li}$ afin de limiter la formation de tritium par réaction ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$. Cet enrichissement est pris à 99,995 %_{mol}, valeur stationnaire dans le MSFR de référence [1].

Les réacteurs à sels chlorures sont majoritairement simulés avec du chlore enrichi en ${}^{37}\text{Cl}$. Cet enrichissement peut être de l'ordre de 99 %_{mol} ou de 99 %_{mass} en fonction des études considérées : cette donnée d'entrée est toujours renseignée dans les simulations présentées dans cette thèse. Le ${}^{35}\text{Cl}$ produit par capture neutronique du ${}^{36}\text{Cl}$ radioactif ayant une demi-vie de 301 000 ans et dont la mobilité rend difficile son confinement [1]. Le ${}^{37}\text{Cl}$ peut toutefois en produire par réaction (n,2n) mais dans de moindre quantité par rapport au chlore naturel. Ce même ${}^{37}\text{Cl}$ entraîne également la production de soufre corrosif par réaction (n, α), voir équation (2.8).



Cette production de soufre mais surtout la production de ${}^{36}\text{Cl}$ sont encore aujourd'hui des verrous technologiques pour les sels chlorures.

2.2.2 Alimentation et traitement

Le combustible liquide et circulant permet l'alimentation et le traitement du sel durant l'opération du réacteur, c'est-à-dire sans l'arrêter.

2.2.2.1 Stratégie d'alimentation

Un réacteur à sels fondus à combustible liquide circulant peut être opéré selon deux méthodes pour l'alimentation et l'extraction de leur combustible :

- en **continu** : le sel d'alimentation est continuellement injecté à l'intérieur du circuit combustible et le pilotage de cette alimentation s'opère par le changement du débit. Par conséquent, l'extraction du sel à traiter se fait également de manière continue afin de garantir un volume de sel fixe. Cette stratégie entraîne néanmoins un fort couplage entre le fonctionnement du réacteur et celui de l'unité de traitement, ce qui implique des réflexions au niveau de la sûreté, toute panne de l'unité impactant le réacteur ;
- par **batch** : une quantité — ou un volume — de sel d'alimentation est injectée dans le sel combustible en une seule fois périodiquement. Par conséquent, une fraction équivalente de sel à traiter est extraite avant l'injection du sel d'alimentation. La période du *batch* peut être courte (tous les jours) ou plus longue (une fois tous les six mois, par exemple).

Tous les concepts étudiés dans le cadre de cette thèse sont alimentés par *batch*. Cependant, certains concepts comme le MSFR de référence présenté dans la section 4.2.3 ont une période d'alimentation de l'ordre du jour. L'hypothèse est ainsi faite dans les simulations numériques de ces réacteurs qu'il s'agit de réacteurs retraités en continu.

En revanche, plusieurs réacteurs étudiés dans le cadre de cette thèse ont une période de *batch* de l'ordre de 6 mois comme les ARAMIS présentés dans la section 5.2. Or le code de simulation neutronique en évolution REM, présenté dans la section 3.3.2, simule un traitement du sel en continu. La section 5.2.2.2 revient sur la comparaison entre ces deux méthodes de traitement et sur l'adaptation nécessaire à réaliser pour simuler un réacteur traité par *batch* avec un schéma de calcul continu.

2.2.2.2 Stratégie historique de traitement en sels chlorures et mise à jour réalisée

Les éléments présents dans le sel au cours de l'évolution sont les suivants :

- les actinides (**An**) d'intérêt, en tant que combustibles et/ou déchets à incinérer ;
- les halogènes (**X**) comme le chlore ;
- les alcalins (**A**) et les alcalinoterreux (**AT**) comme le sodium et le magnésium ;
- les produits de fission, composés principalement des périodes 5 et 6 du tableau périodique (les lanthanides (**Ln**) et les métaux de transition).

Les actinides, les halogènes, les alcalins et les alcalinoterreux se retrouvent sous forme de chlorures dissouts dans le sel. Les produits de fission se retrouvent dans plusieurs états différents. Les propriétés physicochimiques comme les états d'oxydation et donc de valence des éléments du sel renseignent sur ces états qui sont, dans un sel chlorure :

- dissout dans le sel sous forme de chlorures MCl_x ;
- solubilisés dans le sel combustible sans être ionisés ;
- gazeux mais insolubles ;

- métalliques solides donc insolubles ;
- métalliques liquides, avec une phase différente du sel combustible.

Des produits de fission avec des états différents vont avoir des effets différents et par conséquent vont demander une stratégie d'extraction différente.

Les éléments insolubles sont gérés en fonction de leur état respectif. Les gaz et les produits de fissions volatils s'accumulent dans le vase d'expansion, un dispositif situé généralement au-dessus du cœur — du moins dans les concepts étudiés — et permettant de gérer les variations de volume du sel combustible liées aux variations de température. Ces concepts prévoient une extraction avec des pièges froids puis séparés et traités. Certains éléments pourraient se retrouver solubilisés dans le sel en restant piégés dans les interstices formés par les liaisons ioniques. Une solution pour les extraire serait l'injection de gaz — généralement de l'hélium en début de vie du réacteur, les gaz de fission prenant le relais par la suite — pour saturer le sel et ses interstices avec celui-ci : ce phénomène va pouvoir permettre la formation de bulles et est appelé le **bullage**. Les produits de fissions métalliques, qu'ils soient sous forme solide ou liquide, pourront poser problème s'ils restent dans le circuit combustible puisqu'ils ont la susceptibilité de se déposer sur les parois et dans les échangeurs si ceux-ci sont constitués de matériaux métalliques. Les bulles formées par les gaz — PF ou injectés — pourraient capter une partie de ces éléments insolubles par capillarité pour les transporter en dehors du système, le reste se déposant sur les surfaces rencontrées.

Dans ces concepts, les éléments solubles sous forme saline ne sont pas extraits directement du circuit combustible : un prélèvement est réalisé et les éléments sont extraits de celui-ci par compartiments séparés successifs par électrolyse. La figure 2.6 montre le schéma de principe du traitement des sels chlorures de type $\text{NaCl} - \text{AnCl}_3$ réalisé par Hugo Pitois durant sa thèse de doctorat [67]. Celui-ci montre sur son côté droit le principe d'extraction des actinides, mis en évidence en rouge, puis des lanthanides du prélèvement de sel à traiter. Ces derniers sont les déchets des réacteurs considérés et doivent être traités et conditionnés dans des usines de traitement type La Hague. Quant aux actinides, il est intéressant de considérer leur réinjection dans le sel combustible pour poursuivre leur valorisation.

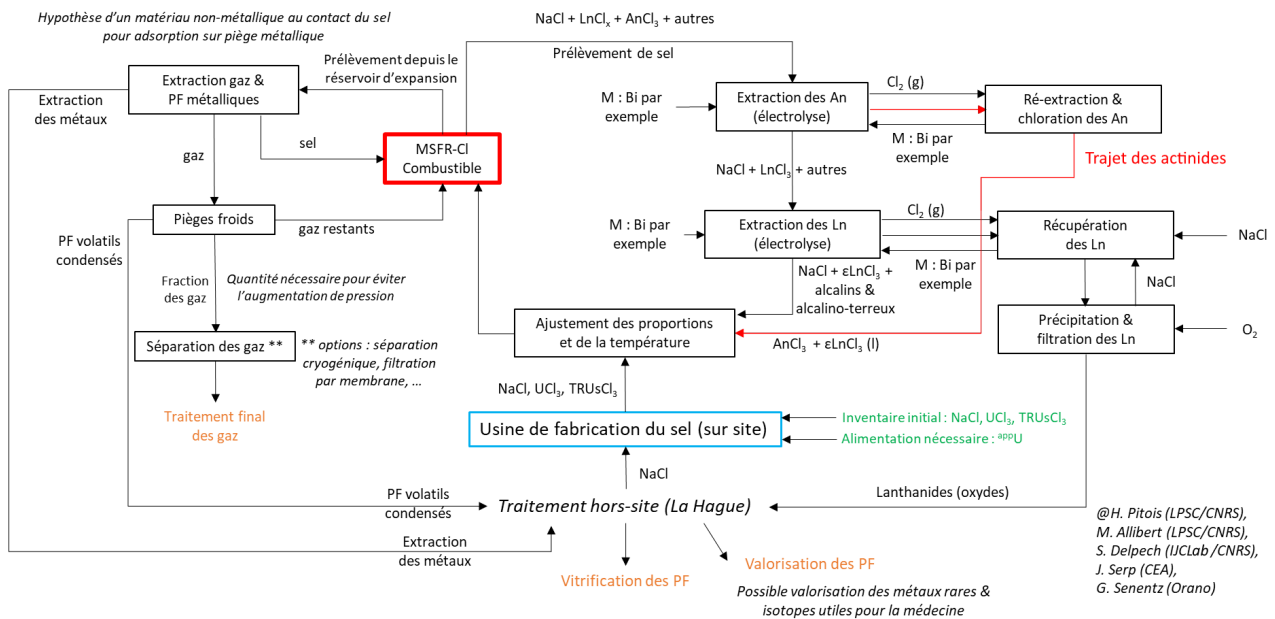
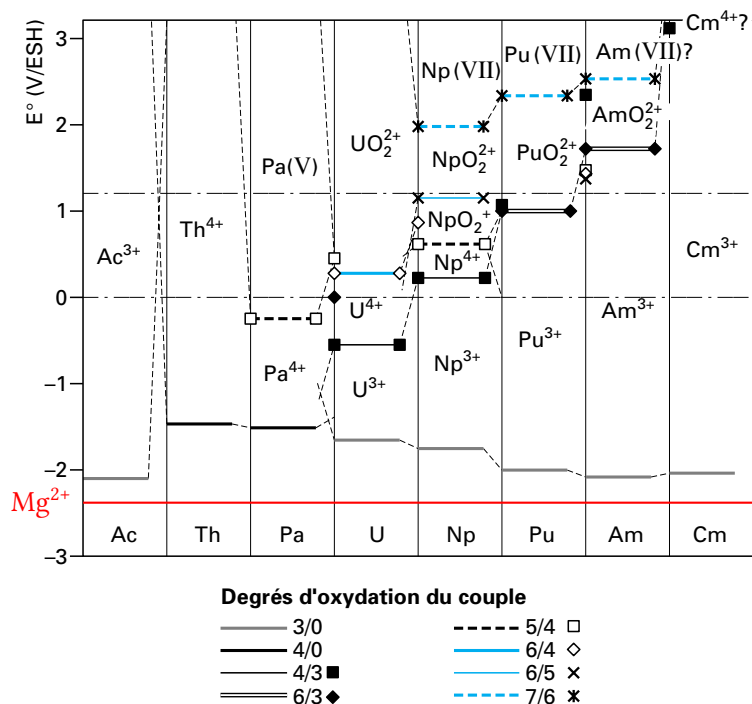


FIGURE 2.6 – Schéma de principe du traitement des sels chlorures $\text{NaCl} - \text{AnCl}_3$ [67]

Le schéma 2.6, très complet, a été réalisé dans le cadre du développement et de l'étude du MSFR-Cl, qui utilise un sel NaCl – UCl₃ – PuCl₃ [67, 78]. La plupart des réacteurs étudiés dans la présente thèse utilisent des sels NaCl – MgCl₂ – AnCl₃, avec donc une quantité non négligeable de magnésium dans le solvant. La réduction des actinides, permettant leur extraction par électrolyse, demande de descendre le potentiel chimique de l'échantillon assez bas. Mais le potentiel de réduction du magnésium est ainsi atteint. La figure 2.7 montre plusieurs potentiels rédox d'actinides avec en évidence la valeur pour le Mg²⁺. Il est possible de remarquer que cette valeur est proche des valeurs pour les III^e et IV^e degrés d'oxydation des actinides.



Les traits horizontaux, reliant deux carrés ou autres symboles, sont les points à pH = 0 du diagramme de Pourbaix [Form. BN 3520], figures 1 à 4

— — — potentiels standards d'oxydation et de réduction de l'eau

FIGURE 2.7 – Comparaison de potentiels standards rédox d'actinides et du magnésium [79]

Ainsi, le magnésium – et donc MgCl₂ – ne suit pas le même chemin que NaCl dans la figure 2.6 puisque celui-ci est extrait avec les actinides [75]. Cela demande une légère adaptation du schéma 2.6 pour les sels magnésium. Des travaux réalisés dans le cadre de cette thèse avec des chimistes du CNRS ont abouti à une mise à jour du schéma de traitement développé par Hugo Pitois pour prendre en compte l'ajout de MgCl₂ [75, 80]. La figure 2.8 montre cette mise à jour en ne s'intéressant qu'à l'extraction liquide, l'extraction des insolubles, sur le côté gauche de la figure 2.6, restant inchangée.

Plusieurs points de comparaison sont également à noter :

- les deux métaux M et M' n'ont *a priori* aucune raison d'être les mêmes et restent à déterminer ;
- les différents ε , interprétés comme une efficacité de non extraction des lanthanides, dépendent des éléments considérés ;
- les ε' sont différents des ε ;
- le FCl, s'il y en a, suit le même trajet que le NaCl.

Dans la suite de ces travaux de thèse, les extractions sont considérées comme parfaites ($\varepsilon = \varepsilon' = 0$) pour les lanthanides dont la valence n'est pas égale à 2 tandis que ces derniers ont une extraction nulle ($\varepsilon = 1$) [75].

2.2. Principe de fonctionnement et tour d'horizon des différentes familles de RSF

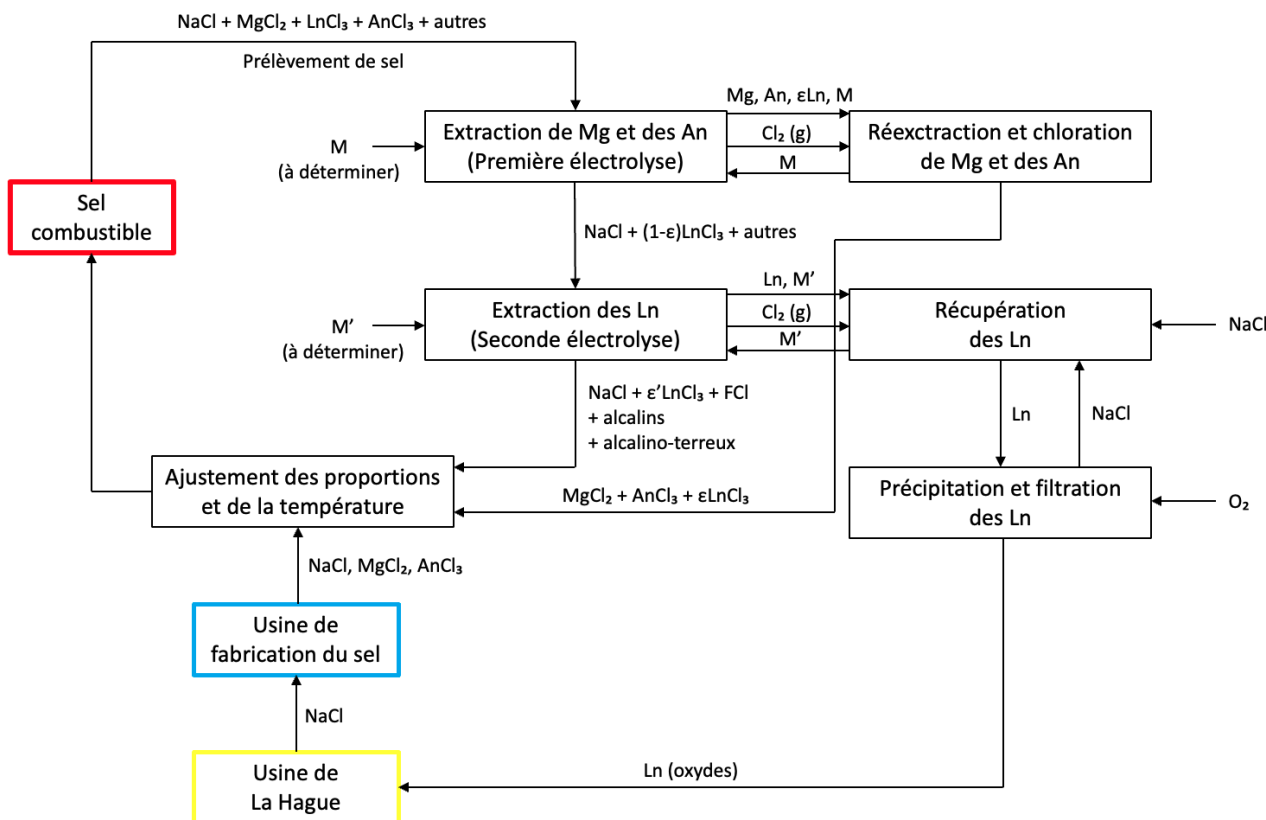


FIGURE 2.8 – Mise à jour du schéma de traitement pour les sels NaCl–MgCl₂–AnCl₃

1 H Hydrogène	■ Extraction chimique (450 jours)																2 He Hélium	
3 Li Lithium	4 Be Beryllium	■ Bullage gazeux (30 s)																10 Ne Néon
11 Na Sodium	12 Mg Magnésium	■ Bullage métalliques (30 s)																17 Cl Chlore
19 K Potassium	20 Ca Calcium	21 Sc Scandium	22 Ti Titane	23 V Vanadium	24 Cr Chrome	25 Mn Manganèse	26 Fe Fer	27 Co Cobalt	28 Ni Nickel	29 Cu Cuivre	30 Zn Zinc	31 Ga Gallium	32 Ge Germanium	33 As Arsenic	34 Se Sélénium	35 Br Brome	36 Kr Krypton	
37 Rb Rubidium	38 Sr Strontium	39 Y Yttrium	40 Zr Zirconium	41 Nb Niobium	42 Mo Molybdène	43 Tc Technétium	44 Ru Ruthénium	45 Rh Rhodium	46 Pd Palladium	47 Ag Argent	48 Cd Cadmium	49 In Indium	50 Sn Étain	51 Sb Antimoine	52 Te Tellure	53 I Iode	54 Xe Xénon	
55 Cs Césium	56 Ba Baryum	Ln Lanthanides	72 Hf Hafnium	73 Ta Tantale	74 W Tungstène	75 Re Rhenium	76 Os Osmium	77 Ir Iridium	78 Pt Platine	79 Au Or	80 Hg Mercure	81 Tl Thallium	82 Pb Plomb	83 Bi Bismuth	84 Po Polonium	85 At Astate	86 Rn Radon	
87 Fr Francium	88 Ra Radium	An Actinides	104 Rf Rutherfordium	105 Db Dubnium	106 Sg Seaborgium	107 Bh Bohrium	108 Hs Hassium	109 Mt Meitnerium	110 Ds Darmstadtium	111 Rg Roentgenium	112 Cn Copernicium	113 Nh Nihonium	114 Fl Flérovium	115 Mc Moscovium	116 Lv Livermorium	117 Ts Tennessee	118 Og Oganesson	
57 La Lanthane	58 Ce Cérium	59 Pr Praséodyme	60 Nd Néodyme	61 Pm Prométhéum	62 Sm Samarium	63 Eu Europium	64 Gd Gadolinium	65 Tb Terbium	66 Dy Dysprosium	67 Ho Holmium	68 Er Erbium	69 Tm Thulium	70 Yb Ytterbium	71 Lu Lutécium				
89 Ac Actinium	90 Th Thorium	91 Pa Protactinium	92 U Uranium	93 Np Neptunium	94 Pu Plutonium	95 Am Américium	96 Cm Curium	97 Bk Berkélium	98 Cf Californium	99 Es Einsteinium	100 Fm Fermium	101 Md Mendélévium	102 No Nobelium	103 Lr Lawrencium				

TABLEAU 2.4 – Schéma d'extraction mis au point pour le projet MIMOSA

2.2.2.3 Schéma d'extraction en sels chlorures

Le schéma d'extraction est la traduction pratique du schéma de traitement dans les simulations numériques dont les outils sont présentés dans le chapitre 3 [81]. Dans ces simulations, les extractions sont simulées par un terme de décroissance ajouté dans les équations de Bateman présentées dans la section 1.2.2.2 et illustrées par l'équation (2.9) avec λ^{extr} la période d'extraction et τ^{extr} le temps d'extraction associé.

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda^{\text{extr}} N_i = -\frac{1}{\tau^{\text{extr}}} N_i \quad (2.9)$$

Les éléments insolubles, qu'ils soient extraits sous forme gazeuse ou métallique par bullage ou alors sous forme métallique liquide, sont considérés dans la suite de ces travaux avec un temps d'extraction de 30 secondes, simulant ainsi une sortie quasi spontanée de ces éléments du sel combustible. Cette extraction concerne les éléments de valence 0 dans le tableau 2.3 ainsi que certains éléments d'autres valences qui devraient, dans la théorie, sortir sous forme de chlorures gazeux : BeCl_2 , AlCl_3 , ZrCl_4 , HfCl_4 et TlCl .

Le tableau 2.4 montre le schéma d'extraction développé durant cette thèse pour le projet MIMOSA en partant du schéma SAMOSAFER développé par Hugo Pitois [67] en s'appuyant sur les valeurs du tableau 2.3. Les éléments hachurés sont les éléments pouvant être extraits dans certaines simulations présentées dans le chapitre 5. Il est à noter que les lanthanides de valence 2 ne sont pas extraits du fait de l'efficacité nulle ($\varepsilon = 1$).

La valeur de 450 jours pour l'extraction chimique est héritée du schéma d'extraction développé dans le cadre du projet EVOL pour le MSFR de référence : en considérant le traitement de 100 kg de noyaux lourds, donc 40 litres de sel par jour [1] pour ce réacteur avec un volume de 18 m^3 [82], cela revient à un temps d'extraction de 449,5 jours arrondi à 450 jours (voir section 5.2.2.2). Celui-ci a été conservé lors de l'élaboration du MSFR-CI avec une extraction de 100 litres par jour pour un volume de 45 m^3 [67]. Cette valeur sera discutée dans la section 5.1.2.

2.2.3 Un réacteur polyvalent, multiphysique et multiéchelle

Les réacteurs à sels fondus forment une grande famille très polyvalente et couvrant de nombreux usages et objectifs. Il est possible de catégoriser ces réacteurs en plusieurs dichotomies :

- les concepts à spectres rapides et ceux à spectres thermiques, voir section 1.2.2.4;
- les concepts utilisant des sels fluorures et ceux utilisant des sels chlorures, voir section 2.1.2.1;
- les concepts à combustible solide et ceux à combustible liquide, voir section 2.2.1.2;
- les concepts de grandes puissances et les AMR.

Enfin, le cycle du combustible envisagé pour le concept :

- cycle de régénération Th/U;
- cycle Th/U démarré aux transuraniens (TRU), Th/TRU;
- cycle de régénération U/Pu;
- incinérateurs de TRU.

La figure 2.9 montre une visualisation de cette taxonomie des différentes familles de réacteurs à sels fondus avec le nom de quelques concepts. Les concepts clairs sont les projets français et parmi ceux-ci, les concepts bleus sont ceux étudiés ou développés dans le cadre de cette thèse.

La grande polyvalence des concepts de réacteurs à sels fondus s'accompagne d'une grande variété de phénomènes physicochimiques dont l'ambition de cette thèse est d'en donner un petit aperçu. Ces phénomènes interviennent dans toutes les échelles d'espace — du barn au monde entier — et de temps — de la milliseconde au millénaire. La figure 2.10 montre une visualisation multiéchelle des champs d'études sur les réacteurs à sels fondus étudiés dans le cadre de cette thèse et présentés dans ce manuscrit avec les différentes sections associées à ces présentations, sur une idée originale d'Axel Laureau et d'Adrien Bidaud.

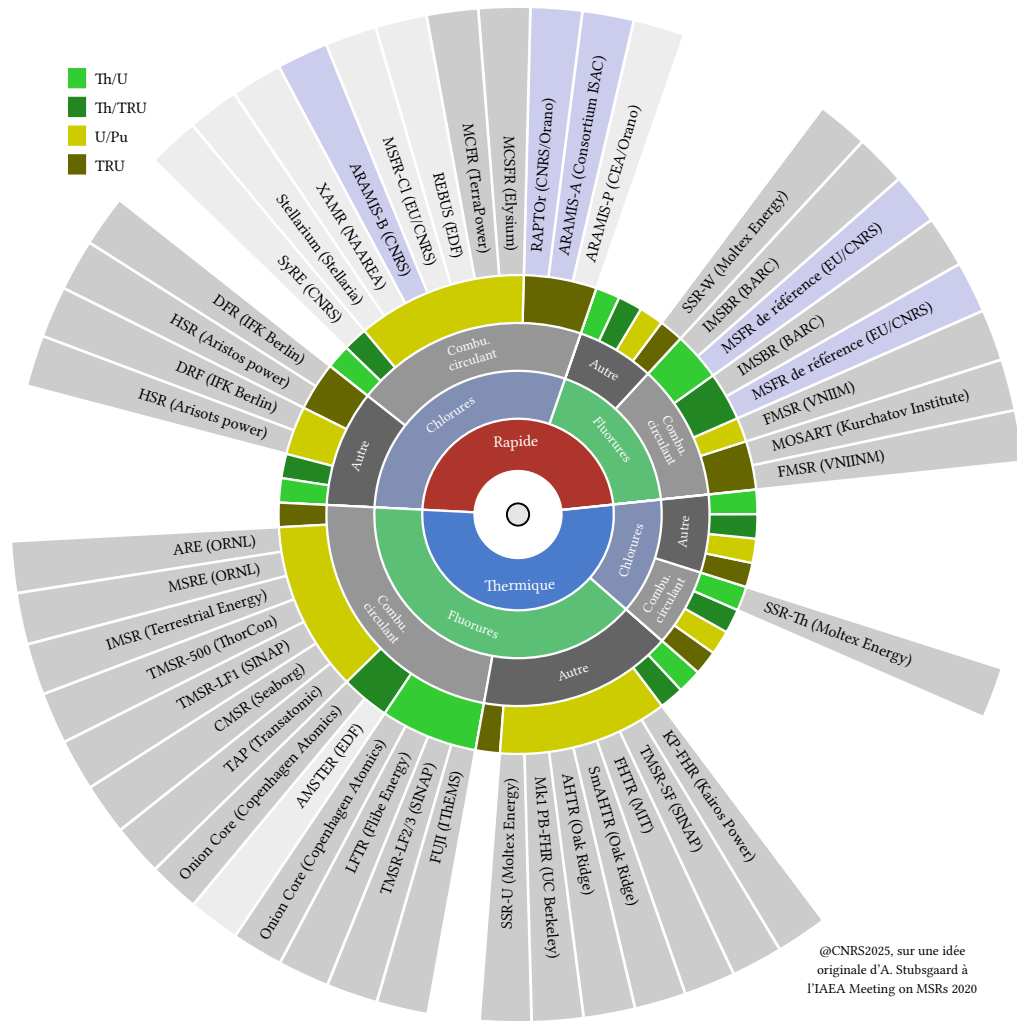


FIGURE 2.9 – Taxonomie des différentes familles de RSF

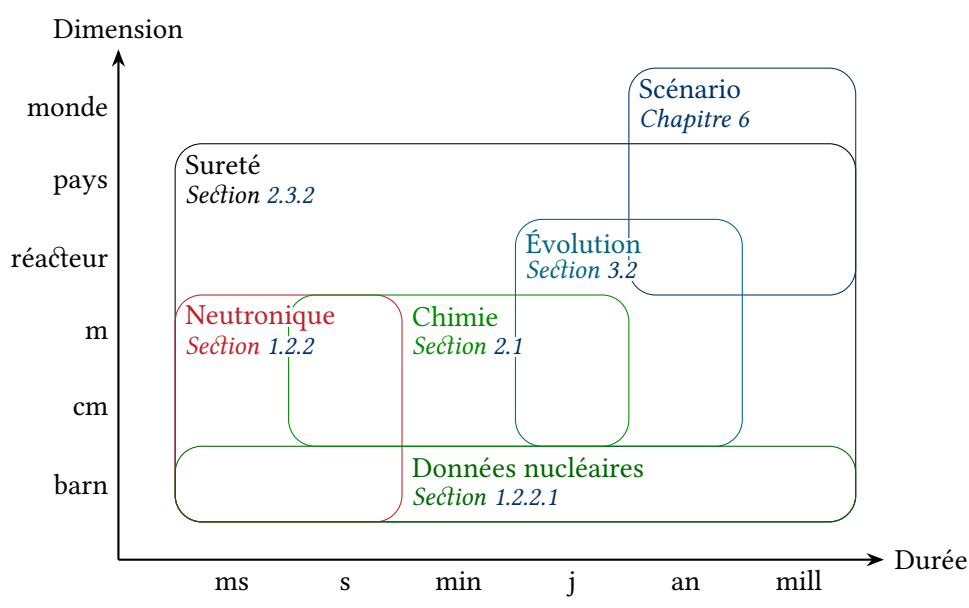


FIGURE 2.10 – Visualisation multiéchelle des champs d'études sur les réacteurs à sels fondus présentés dans cette thèse

💡 À retenir (2.2)

Les réacteurs à sels fondus forment une grande variété de familles et de concepts. Les familles d'intérêt dans le cadre de cette thèse sont les réacteurs à combustible liquide circulant, à spectre rapide et à sels chlorures et fluorures. Le fait d'avoir un combustible liquide et circulant impose une réflexion poussée sur l'alimentation et le traitement du combustible qu'il est prévu de réaliser pendant le fonctionnement du réacteur ; les simulations numériques doivent prendre en compte un schéma de traitement spécifique au réacteur simulé. Un nouveau schéma de traitement a été développé dans le cadre de cette thèse pour s'adapter aux sels $\text{NaCl} - \text{MgCl}_2 - \text{AnCl}_3$.

2.3 Historique et projets français et internationaux

2.3.1 De l'armée américaine à EDF

2.3.1.1 L'ARE

À la sortie de la Seconde Guerre mondiale, et dans la suite du projet Manhattan, l'armée de l'air américaine a étudié la possibilité de concevoir un réacteur nucléaire pour la propulsion aéronautique. La figure 2.11 montre une photographie du Convair NB-36H, un avion ayant volé avec à son bord un réacteur nucléaire en fonctionnement — sans que cela soit utile pour la propulsion — et dont la présence est indiquée par un trèfle radioactif sur la queue de l'appareil. C'est dans cette optique, et parmi plusieurs concepts à l'étude, que fut construit à l'ORNL l'ARE (*Aircraft Reactor Experiment*, expérience de réacteur aérien). Il s'agit d'un réacteur à sels fluorures $\text{NaF} - \text{ZrF}_4 - \text{UF}_4$ à spectre thermique et d'une puissance de $2,5 \text{ MW}_{\text{th}}$. Il a divergé en 1954 et a fonctionné neuf jours au sol en régime critique durant lesquels de la corrosion sur les structures en Inconel a pu être mise en évidence [27]. L'apparition des missiles balistiques intercontinentaux a rendu le programme de recherche sur la propulsion nucléaire aérienne obsolète et celui-ci a pris fin au cours de l'année 1961.



FIGURE 2.11 – Le Convair NB-36H en vol

2.3.1.2 Le MSRE

À la suite des résultats de l'ARE, l'ORNL a démarré dès l'année 1956 un projet civil de réacteur à sels fondus. Le MSRE (*Molten Salt Reactor Experiment*, réacteur expérimental à sels fondus) est un réacteur à sels fluorures ${}^7\text{LiF} - \text{BeF}_2 - \text{ZrF}_4 - \text{UF}_4$ à spectre thermique et d'une puissance de 8 MW_{th} . Il a été alimenté avec de l'uranium enrichi pour atteindre la criticité, puis des essais ont été réalisés avec de l' ${}^{233}\text{U}$. Enfin, sur la fin de vie du réacteur, de petites quantités de plutonium ont été ajoutées pour démontrer la flexibilité du système par rapport à la composition du combustible [83]. Le lithium est enrichi en ${}^7\text{Li}$ pour limiter l'absorption neutronique [84]. Il a divergé en 1965 et a fonctionné pendant 17 000 heures au cours des quatre années suivantes. La figure 2.12 montre une photographie de l'intérieur du MSRE [85].

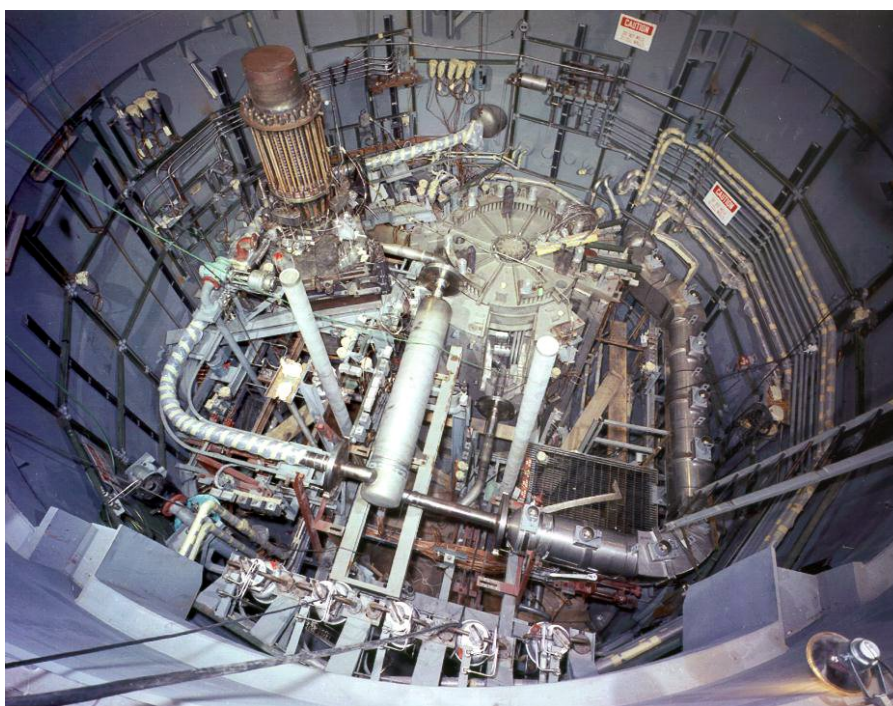


FIGURE 2.12 – Photographie du cœur, des pompes et de l'échangeur de chaleur du MSRE [85]

Plusieurs conclusions ont pu être réalisées au cours de cette expérience et parmi celles-ci, la possibilité d'envisager le cycle de régénération ${}^{232}\text{Th}/{}^{233}\text{U}$ et la mise au point d'un matériau résistant aux sels fluorures.

2.3.1.3 D'autres projets internationaux sans construction

La fin du projet MSRE s'est accompagnée peu de temps après par la fin du programme de recherche sur les réacteurs à sels fondus à l'ORNL. Mais avant cela, le projet MSBR (*Molten Salt Breeder Reactor*) avait débuté pour étudier la possibilité de construire un réacteur régénérateur de puissance en cycle thorium. Depuis 1976, et jusqu'à la fin du xx^e siècle, très peu de recherches ont été faites du côté des États-Unis. D'autres pays ont pu lancer des recherches, parfois en s'inspirant des travaux de l'ORNL [27] : l'Union soviétique a lancé un programme menant à la construction et à l'exploitation de boucles à sels fondus entre 1976 et 1986 ; un ingénieur polonais, Mieczyslaw Taube, a travaillé sur une ébauche de réacteur à sels chlorures, régénérateur et à spectre rapide dès 1961, et continua ce projet en Suisse jusqu'à la fin des années 1970 ; le Japon a lancé un programme de réacteurs à sels fondus dans les années 1970 jusqu'aux années 1980 basé sur le MSBR ; enfin, la Chine a construit une maquette proche du MSRE entre 1970 et 1973 avant d'interrompre ses recherches sur les RSF jusqu'à récemment.

2.3.1.4 L'intérêt français

Entre 1973 et 1983, EDF et le CEA ont lancé une série d'études sur les réacteurs à sels fondus en repartant de l'esquisse du MSBR [86], illustré par la figure 2.13. Ces études ont permis la réalisation de boucles d'essai et de conception de pompes et d'échangeurs de chaleur en graphique.

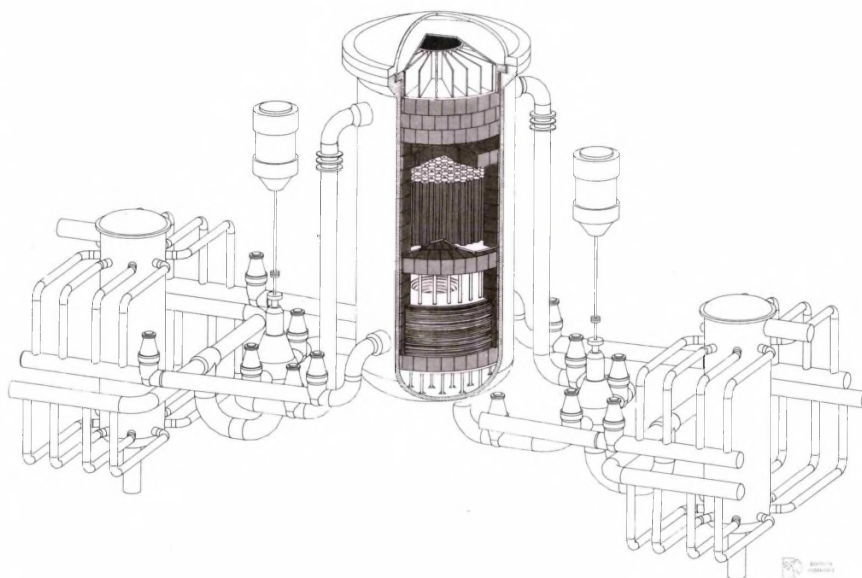


FIGURE 2.13 – Vue conceptuelle du MSBR [86]

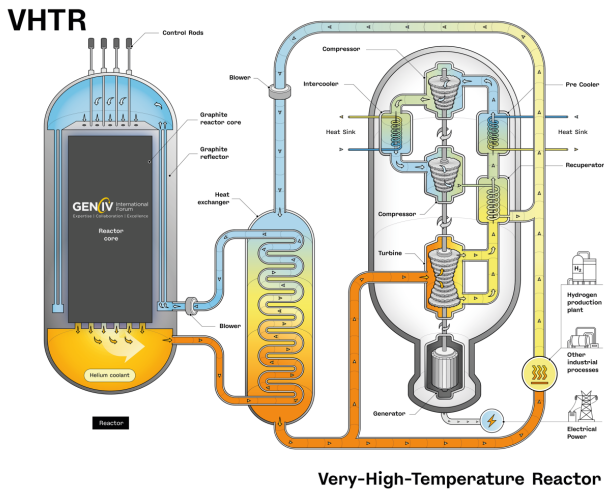
La loi Bataille de 1991 ayant relancé les recherches sur la transmutation, des études portant sur la réévaluation des caractéristiques du MSBR ont démarré à partir de 1998 par EDF et le CNRS, notamment dans le cadre des projets AMSTER (*Actinide Molten Salt TransmutER*) [87] et REBUS pour EDF et TMSR (*Thorium Molten Salt Reactor*) pour le CNRS. AMSTER est un concept de réacteur à sels fluorures $\text{LiF} - \text{BeF}_2 - \text{AnF}_4$ incinérateur de transuraniens tandis que REBUS-3700 est un réacteur à sels chlorures régénérateur en cycle $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$. Le TMSR, devenu TMSR-NM (Non Modéré) [1] et renommé depuis MSFR, est présenté dans la partie 2.4.1.

2.3.2 Un réacteur de IV^e génération à l'aube du XXI^e siècle

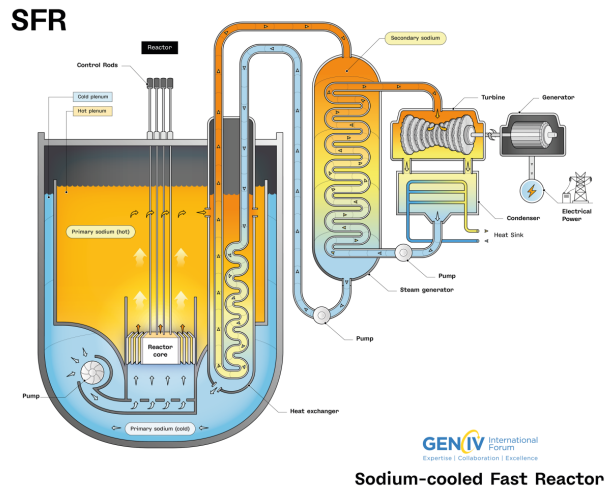
2.3.2.1 Le GIF et la IV^e génération

En 2000, le département de l'Énergie des États-Unis décide de réunir les représentants de neuf pays — dont la France — pour démarrer des discussions portant sur la collaboration internationale pour le développement du nucléaire de IV^e génération [88]. Cette collaboration est devenue l'année suivante le Forum International Génération IV — ou GIF — dont l'objectif, supporté techniquement par la NEA (une agence de l'OCDE appelée AEN en français), a été de définir une IV^e génération de réacteurs nucléaires :

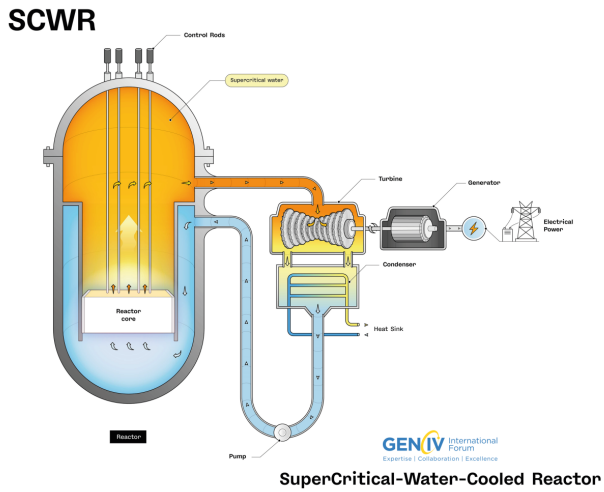
- la I^e génération de réacteurs correspond aux premiers réacteurs expérimentaux et industriels mis en service avant les années 1970. Beaucoup de filières ont été explorées, il est possible de noter par exemple la construction en France des UNGG, d'un REP, d'un réacteur à eau lourde et d'un RNR-Na de recherche, tous d'une puissance allant de quelques dizaines à quelques centaines de MW_e ;
- la II^e génération comprend les réacteurs électrogènes construits jusqu'à la fin du xx^e siècle. Ce sont des réacteurs de fortes puissances (au-delà de 1000 MW_e) déployés à grande échelle et majoritairement des REP ainsi que des REB ;
- la III^e génération est la génération développée à partir des années 1990 et prenant en compte le retour d'expérience de la catastrophe de Chernobyl. La génération III+ en est l'évolution prenant en compte l'accident de Fukushima. Les EPR et futurs EPR2 sont des réacteurs de génération III/III+.



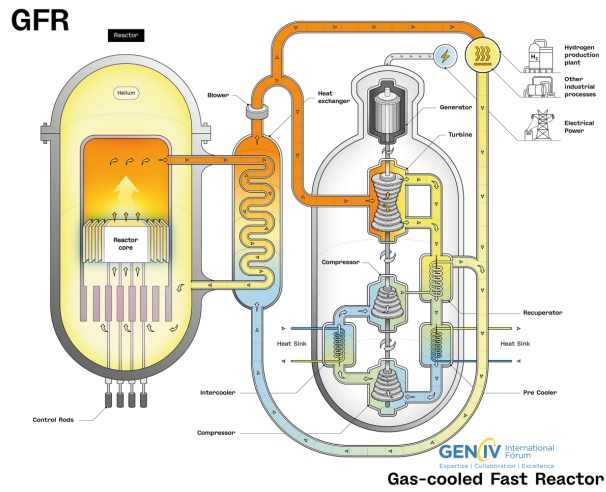
(a) VHTR (RTHT)



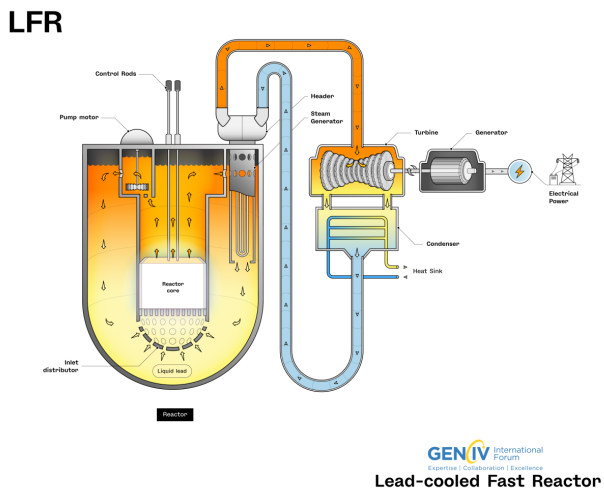
(b) SFR (RNR-Na)



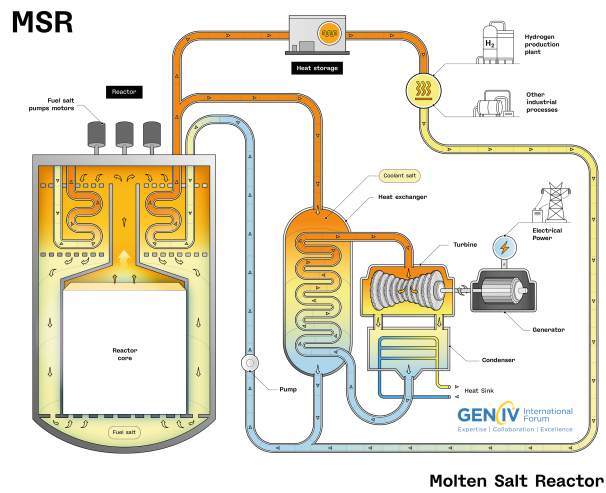
(c) SCWR (RESC)



(d) GFR (RNR-gaz)



(e) LFR (RNR-Pb)



(f) MSR (RSF)

FIGURE 2.14 – Les six concepts retenus par le GIF [88]

La IV^e génération est définie par le GIF au début des années 2000 comme étant des réacteurs remplissant différents critères et objectifs, dont les quatre principaux sont [88] :

- la durabilité et la pérennité : disponibilité des systèmes sur le long terme, gestion et réduction des déchets à longs termes ;
- la sûreté et la fiabilité : excellence des opérations en termes de sûreté et faible probabilité de dommage structurelle du cœur ;
- l'économie : avantage économique sur les autres sources d'énergie et niveau de risque financier comparable à celles-ci ;
- la résistance à la prolifération : dissuasion de toutes tentatives d'utilisation malveillante du matériel (plutonium) et protection contre les actes terroristes.

Le GIF a défini une liste de six concepts prometteurs selon les critères exposés ci-dessus. Ces six concepts, présentés dans la figure 2.14 sont les suivants :

- les Réacteur à Très Haute Température (RTHT) — en anglais VHTR (*Very High Temperature Reactor*) — sont des réacteurs thermiques dont le caloporteur, souvent de l'hélium, atteint des températures proches de 1000 °C (figure 2.14a). Le concept de référence retenu par le GIF est composé de combustibles TRISO (*TRidimensional ISOmetric*) ;
- les RNR (Réacteur à Neutrons Rapides) refroidis au sodium (figure 2.14b) présentés plus en détail dans l'interlude 2.1 ;

⊕ Interlude 2.1 : Les RNR-Na, un autre réacteur de IV^e génération

Les RNR-Na, appelés SFR (*Sodium-cooled Fast Reactor*) en anglais, sont des réacteurs utilisant du sodium liquide en tant que caloporteur. L'eau utilisée dans les REP et les REB est un bon modérateur neutronique, ces réacteurs ont donc des spectres thermiques. À l'inverse, le sodium est bien plus transparent aux neutrons : les RNR-Na sont donc des réacteurs rapides. La figure 2.15 schématise le principe de fonctionnement d'un RNR-Na [32].

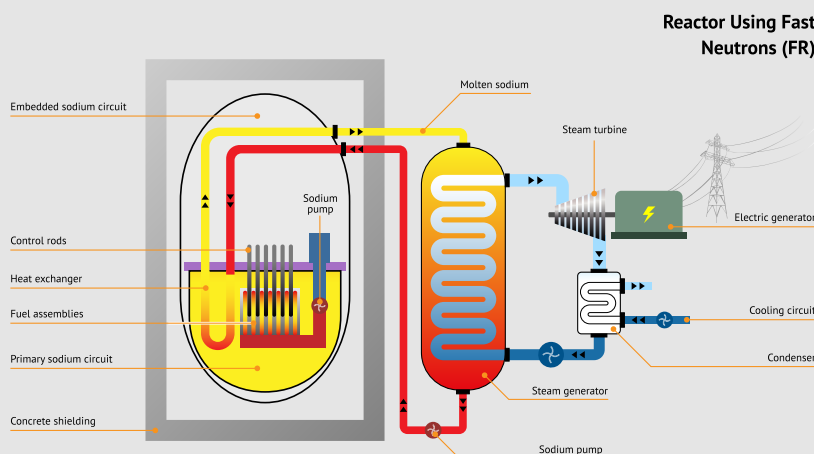


FIGURE 2.15 – Principe de fonctionnement d'un RNR-Na

Les RNR-Na forment la famille de réacteurs rapides la plus représentée dans le monde. Des projets, passés ou actuels, ont vu et voient le jour aux États-Unis, en Russie, en Chine et en France. Il peut être noté le cas du réacteur français Superphénix — aujourd'hui en démantèlement — qui était un réacteur surgénérateur de puissance utilisant le cycle U/Pu.

- les RESC (Réacteur à Eau SuperCritique) – en anglais SCWR (*SuperCritical Water Reactor*) – sont des réacteurs utilisant de l’eau surpercritique en caloporteur (figure 2.14c);
- les RNR refroidis au gaz – en anglais GFR (*Gas-cooled Fast Reactor*) – sont des réacteurs rapides à caloporteur gaz, souvent de l’hélium (figure 2.14d);
- les RNR refroidis au plomb – en anglais LFR (*Lead-cooled Fast Reactor*) – sont des réacteurs rapides avec du plomb ou du plomb-bismuth liquide en caloporteur (figure 2.14e);
- enfin, les RSF – ou MSR (*Molten Salt Reactor*) en anglais – qui sont l’objet de cette thèse (figure 2.14f). Le concept de référence retenu par le GIF depuis 2008 est le MSFR de référence présenté dans la section 2.4.1.

2.3.2.2 L’équipe MSFR

À partir de 1999, des travaux sur les réacteurs à sels fondus ont commencé à avoir lieu à l’Institut des Sciences Nucléaires de Grenoble – devenu en 2002 le LPSC (*Laboratoire de Physique Subatomique & Cosmologie*) – au sein du groupe Physique des réacteurs dont s’est détachée en 2017 l’équipe ayant pris le nom de son réacteur phare : le MSFR, présenté dans la section 4.2.3. Différentes doctorantes et doctorants [24,25,30,89] ont travaillé sur ce sujet avec parfois des partenariats industriels avec par exemple EDF [82, 90, 91], Framatome [92], Orano [27] et le CEA [64] et parfois des projets français ou européens [67,93] comme ceux présentés dans la section 2.3.3.1. Des habilitations à diriger les recherches ont également été menées [1, 94]. Une équipe française plus étendue est constituée avec des membres du laboratoire Subatech (*Laboratoire de physique SUBAtomique et TECHnologies associées*) et l’IJCLab (*Laboratoire de physique des deux infinis Irène Joliot-Curie*).

2.3.3 Un puissant regain d’intérêt

2.3.3.1 Historique des projets français et européens

Au cours des 20 dernières années, différents projets français et européens se sont succédé autour de la thématique des réacteurs à sels fondus. La figure 2.16 montre l’historique de ces projets avec la chronologie des principaux réacteurs étudiés au sein de l’équipe MSFR ainsi que les thèses et les HDR passées et en cours. Les projets européens sont :

- MOST (*Review of MOlten Salt reactor Technology*), 2001–2004, pour l’évaluation des données et des connaissances sur les sels fondus;
- ALISIA (*Assessment of LIquid Salts for Innovative Applications*), en 2007, explorant le potentiel des sels fondus pour l’énergie nucléaire;
- EVOL (*Evaluation and Viability Of Liquid fuel fast reactor*), 2011–2014, centrée autour de l’évaluation du *design* du MSFR de référence;
- SAMOFAR (*Safety Assessment of the MOlten salt FAst Reactor*), 2015–2019, évaluant la sûreté du MSFR [95];
- SAMOSAFER (*Severe Accident MOdeling and Safety Assessment for Fluid-fuel Energy Reactors*), 2019–2023 en suite de SAMOFAR, pour identifier les barrières de sûreté en cas d’accidents sévères [67, 78];
- MIMOSA, présenté dans la section 2.3.3.2;
- ENDURANCE (*EU kNowleDge hUb foR enAbling MolteN Salt ReaCtor safety development and dEploy-ment*), 2024–2028 en suite de SAMOSAFER [96, 97].

Enfin, des études ont pu avoir lieu au sein des projets français suivants, bien que non spécifiques aux RSF :

- PACEN (*Programme sur l’Aval du Cycle ÉlectroNucléaire*), depuis 2004, ayant permis d’unir une communauté française autour d’un concept de RSF;
- NEEDS (*Nucléaire, Énergie, Environnement, Déchets, Sociéte*), depuis 2011, ayant permis de consolider la communauté et de faire des études de sûreté.

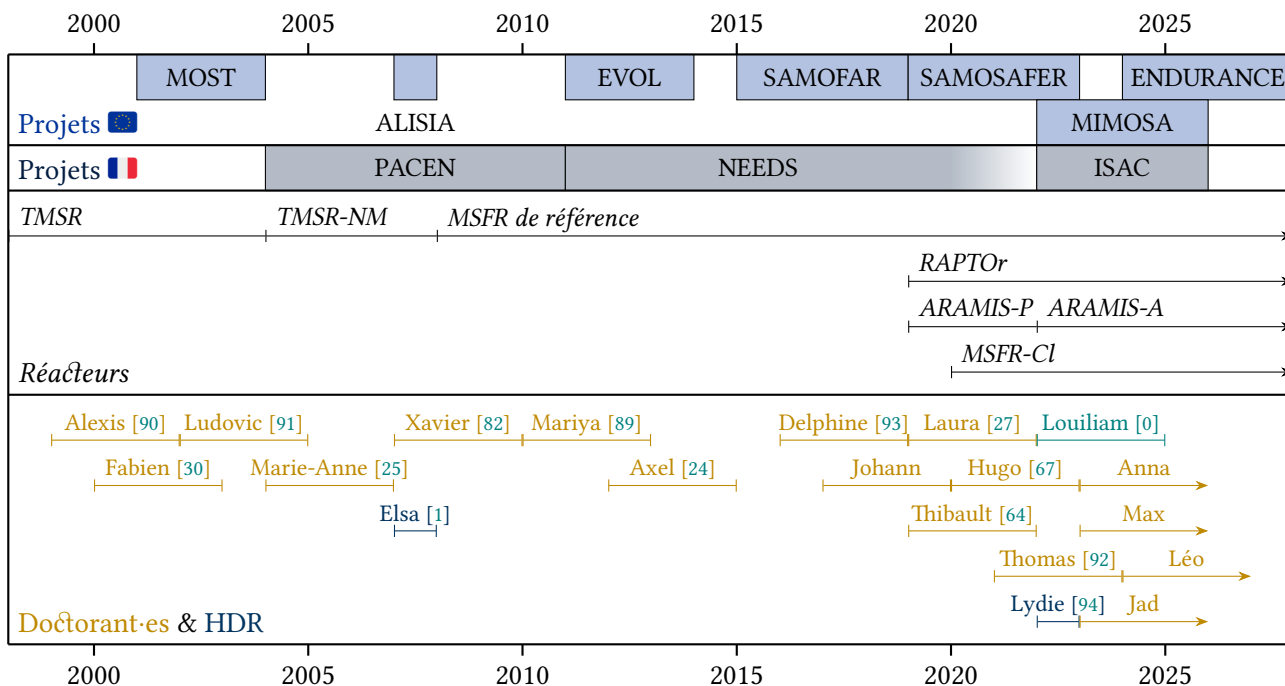


FIGURE 2.16 – Historique des projets, des réacteurs, des thèses et des HDR au sein de l’équipe MSFR (version 2025)

2.3.3.2 Les projets ISAC et MIMOSA : cadre de cette thèse

La présente thèse de doctorat s’insère au sein de deux projets, un projet français et un projet européen se déroulant entre 2022 et 2026 et dont les logos sont présentés dans la figure 2.17.



FIGURE 2.17 – Logos des projets ISAC et MIMOSA

ISAC Le projet ISAC (*Innovative System for Actinide Conversion*), cofinçant cette thèse, est un projet français piloté par le CEA en collaboration avec le CNRS, EDF, Framatome et Orano, financé dans le cadre du plan de relance France 2030 [98]. Ce projet vise à étudier la conception et la capacité d’incinération de l’américium d’un concept de RSF nommé ARAMIS-A, présenté dans la section 2.4.3, et dont l’objectif serait la fermeture du cycle du combustible français en incinérant l’américium produit par un parc de réacteurs de IV^e génération à l’horizon de la fin du siècle. Cinq groupes de travail, appelés « lots » structurent le projet :

- lot 1 : Management ;
- lot 2 : Esquisse ;
- lot 3 : Scénarios ;
- lot 4 : Chimie – Cycle du combustible ;
- lot 5 : Matériaux – Corrosion.

Les lots sont eux-mêmes organisés en tâches et en sous-tâches. Les sous-tâches concernées dans ce travail de thèse sont :

- sous-tâche 2.1.1 : Conception cœur, cadre de la section 5.2 ;
- sous-tâche 3.1.1 : Adaptation des codes de scénarios et *benchmark*, présentée dans la section 6.2.1 ;
- sous-tâche 3.1.3 : Études de sensibilité, scénarios exploratoires, présentée dans la section 6.2.3.

MIMOSA Le projet MIMOSA (*Multi-recycling strategies of LWR (Light Water Reactor) SNF (Spent Nuclear Fuel) focusing on Molten Salt technology*) est un projet européen financé par la Commission européenne dans le cadre du programme Horizon Europe [97, 99]. Il est piloté par Orano en collaboration avec divers acteurs européens tels que le CNRS, CVR³, EDF, le JRC de Karlsruhe⁴, NRG⁵, Nuclear-21, la *startup* Thorizon et TU Delft⁶. L'objectif du projet est d'étudier la fermeture du cycle du combustible à l'échelle européenne en multi-recyclant les combustibles usés des réacteurs à eau légère en considérant plusieurs technologies de réacteurs à sels fondus incinérateurs, comme par exemple le RAPTOR présenté dans la section 2.4.2 ou encore le réacteur développé par Thorizon. Ce projet est organisé en différents groupes de travail, ou WP (*Work Package*), que sont :

- WP1 : *Multi-Recycling Scenario Analysis and Roadmapping* ;
- WP2 : *Molten Salt Properties* ;
- WP3 : *Molten Salt composition evolution in reactor* ;
- WP4 : *MSR Key technology topics* ;
- WP5 : *Molten Salt recycling and Back end* ;
- WP6 : *Production and recovery of valuable isotopes* ;
- WP7 : *Dissemination, Exploitation, Communication* ;
- WP8 : *Project management*.

Les travaux de thèses présentés dans ce manuscrit ont pris part dans le cadre du WP3 avec des applications dans les WP1, WP5 et WP6.

2.3.3.3 Un retour en grâce des sels fondus, notamment en France

Bien qu'étudiés depuis plus de 25 ans, notamment par EDF et au CNRS et en particulier au LPSC de Grenoble, les réacteurs à sels fondus semblaient peu intéresser la filière nucléaire française jusqu'à la fin des années 2010. La stratégie française au début du XXI^e siècle, pilotant les recherches et les développements dans le milieu des réacteurs rapide, était centrée sur la technologie des réacteurs au sodium. La mise à l'arrêt du projet ASTRID en 2019 a eu pour conséquences de remettre sur le devant de la scène d'autres technologies de réacteurs rapides et notamment les sels fondus. La figure 2.18 montre l'évolution de la fréquence d'occurrence des différentes variations orthographiques et de casse de « réacteur(s) à sel(s) fondu(s) » dans les sources imprimées en langue française entre 1950 et 2022 sur l'application Ngram Viewer de Google. Il est possible de remarquer quatre périodes montrant un intérêt pour ce type de réacteur : la fin des années 1950 correspondant aux travaux de l'ORNL, les années 1970 (voir section 2.3.1.3), les années 2000 avec les travaux du CNRS et le GIF, et enfin le début des années 2020 avec un retour en grâce assez prononcé.

Ce retour en grâce s'est accompagné de la création de nombreuses *startups* se lançant dans la « course » aux petits réacteurs de IV^e génération dont notamment, pour les RSF, NAAREA (*Nuclear Abundant Affordable Resourceful Energy for All*) avec l'objectif de créer de petits réacteurs modulaires de 40 MW_e ou 80 MW_{th} appelés XAMR [100] et Stellaria, issu du CEA et de Schneider Electric, dont le Stellarium est prévu pour avoir une puissance de 250 MW_e ou encore 540 MW_{th} pour la chaleur industrielle [101]. Il est également possible de parler de la *startup* européenne Thorizon, originaire des Pays-Bas mais également implémentée en France avec le concept Thorizon One d'une puissance de 250 MW_{th} [102].

D'autres acteurs dans le monde ont lancé des projets de RSF et il est possible de noter l'existence des *startups* TerraPower, Kairos Power, Terrestrial Energy aux États-Unis et au Canada, Moltex au Royaume-Uni,

3. *Centrum výzkumu Řež*, Centre de recherche de Řež, République tchèque

4. *Joint Research Centre*, Centre commun de recherche, Karlsruhe, Allemagne

5. *Nuclear Research and Consultancy Group*, Pays-Bas

6. *Technische Universiteit Delft*, Université technique de Delft, Pays-Bas

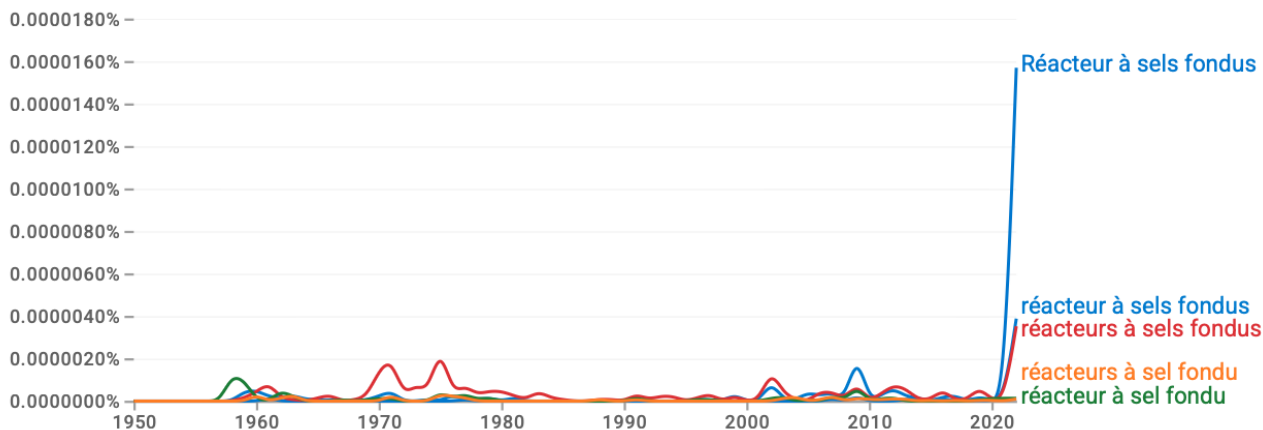


FIGURE 2.18 – Évolution de la fréquence d’occurrence des variations orthographiques et de casse de « réacteur(s) à sel(s) fondu(s) » dans les sources imprimées en langue française entre 1950 et 2022

Copenhagen Atomics et Seaborg au Danemark ainsi que certains projets au Canada ou en Suisse [103]. La plupart de ces *startups* se retrouvent avec des partenaires historiques du sujet au sein du projet européen ENDURANCE démarré en 2024 [96, 97, 104]. Enfin, la Chine a fait diverger un réacteur à sels fondus de 2 MW_{th} reprenant les plans du MSRE le 11 octobre 2023, le TMSR-LF1 [103].

À retenir (2.3)

Les premiers réacteurs à sels fondus de l’histoire étaient l’ARE et le MSRE aux États-Unis dans les années 1950 et 1960. À la fin de ces projets, malgré une préférence de l’industrie nucléaire pour les technologies de réacteurs à eau, plusieurs études ont persisté auparavant dans le monde avec, notamment, EDF et le CEA dans les années 1970. La création du GIF au début des années 2000 a relancé les études sur ce type de réacteur, initiées par le CNRS et EDF, et reprises ensuite par l’industrie au début des années 2020 avec la multiplication des projets, y compris français et européens et l’apparition de nombreuses *startups*.

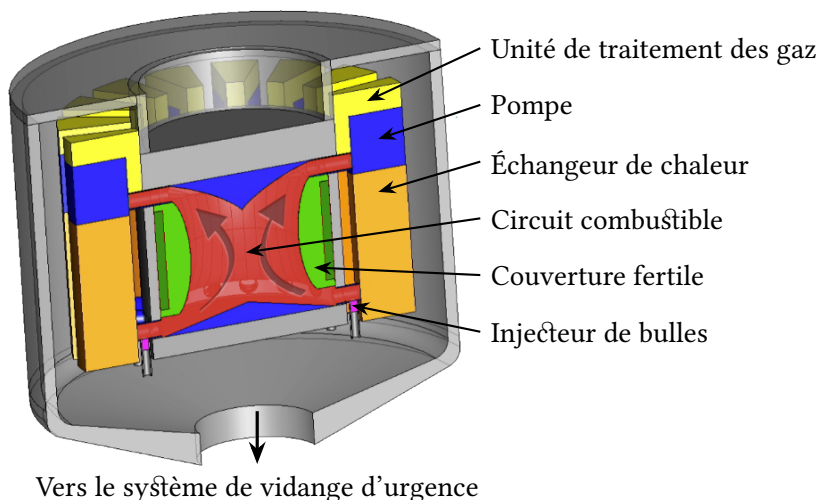


FIGURE 2.19 – Illustration du MSFR de référence

2.4 Concepts de réacteurs à sels fondus étudiés dans cette thèse

Trois familles de réacteurs à sels fondus ont fait l'objet d'études dans le cadre de cette thèse : le MSFR de référence, le RAPTOR et les différentes esquisses d'ARAMIS.

2.4.1 Le MSFR de référence : un réacteur grenoblois

Le MSFR de référence, anciennement appelé TMSR puis TMSR-NM [1], est le réacteur développé et étudié historiquement par l'équipe éponyme au LPSC de Grenoble. Il s'agit d'un réacteur surgénérateur en cycle Th/U, à sels fluorures et à spectre rapide depuis la version TMSR-NM (non modérée), d'une puissance de 3 GW_{th} pour $1,5 \text{ GW}_e$ et avec un circuit combustible de 18 m^3 dont 9 m^3 en cœur. Développé depuis le début des années 2000, il est depuis 2008 le *design* du réacteur à sels fondus de référence désigné par le GIF pour représenter la filière. La figure 2.19 montre une illustration de ce concept.

Deux versions du réacteur ont été développées, notamment dans le cadre du projet européen EVOL : une version démarrée à l'uranium enrichi et aux transuraniens à base de sels $\text{LiF} - {}^{233}\text{ThF}_4 - \text{enrUF}_3 - (\text{TRU})\text{F}_3$ et une version démarrée à l' ${}^{233}\text{U}$ à base de sels $\text{LiF} - {}^{233}\text{ThF}_4 - {}^{233}\text{UF}_3$. Le projet EVOL a été le cadre d'un *benchmark* entre différents codes neutroniques en évolution (voir section 3.2) en se servant de ces deux versions du MSFR. Ces *benchmarks* sont depuis lors utilisés et recalculés de manière régulière pour suivre les évolutions du code de l'équipe MSFR (voir section 3.3.2), notamment dans le cadre des différents développements présentés dans la section 4.2.2 de cette thèse. Enfin, la version du MSFR de référence utilisée pour les simulations neutroniques est décrite dans la section 4.2.3.

Il est à noter qu'une version chlorure à base de sels $\text{NaCl} - \text{UCl}_3 - \text{PuCl}_3$, le MSFR-Cl, a été développée dans le cadre du projet européen SAMOSAFER et de la thèse de doctorat d'Hugo Pitois [67].

2.4.2 RAPTOR : un incinérateur de plutonium et de transuraniens

À la fin des années 2010, Orano s'intéresse à la gestion du plutonium dans des réacteurs à sels fondus (voir section 1.4.1). C'est dans ce contexte que démarre la thèse de Laura Mesthiviers au LPSC de Grenoble en collaboration CNRS/Orano [27] portant à l'origine sur la conversion du plutonium et ayant abouti au concept RAPTOR (*Réacteur Alimenté en Plutonium et en Transuraniens pour Orano*), un petit réacteur incinérateur de transuraniens. Il s'agit d'une version miniature du MSFR, utilisant un sel chlorure à base de $\text{NaCl} - \text{MgCl}_2 - \text{AnCl}_3$ et d'une puissance de $300 \text{ MW}_{\text{th}}$. Plusieurs versions ont été développées avec des géométries différentes mais la version la plus aboutie dans [27] possède un volume de sel combustible de $3,88 \text{ m}^3$ dont $1,94 \text{ m}^3$ en cœur. La figure 2.20 illustre cette version du RAPTOR [105].

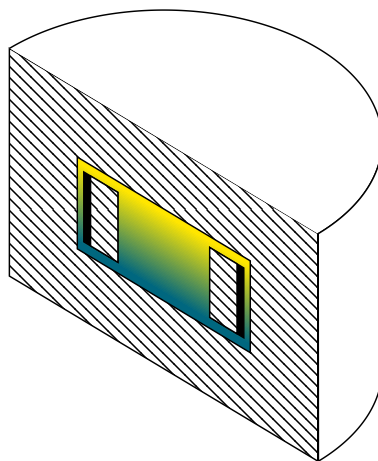


FIGURE 2.20 – Illustration d'un RAPTOR [105]

Différentes déclinaisons du RAPTOR sont utilisées pour les études menées dans le cadre du projet européen MIMOSA. La figure 2.21 montre l'organisation des travaux au sein de ce projet autour de trois géométries de RAPTOR, définies dans un *Milestone* du projet [106] et présentées dans la section 5.1 : il s'agit de concepts avec des cœurs de respectivement 0,5 m³, 2 m³ et 9 m³ (pour un total de respectivement 1 m³, 4 m³ et 18 m³ de sel combustible). Chaque concept est simulé avec un sel chlorure contenant du magnésium NaCl–MgCl₂–PuCl₃ ou du thorium NaCl–ThCl₄–PuCl₃ et des versions alimentées avec du plutonium ou avec du plutonium et des actinides mineurs sont considérées en utilisant le schéma de traitement présenté dans la section 5.1.2. Plusieurs de ces configurations ont donné lieu à des résultats présentés dans des livrables du projet [107, 108].

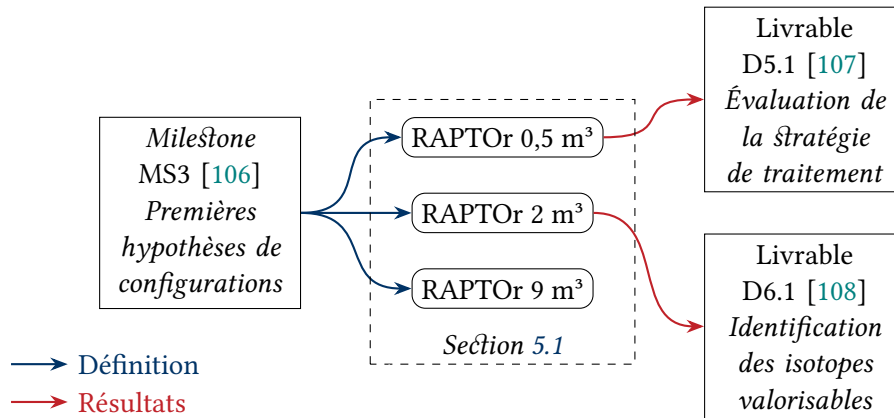


FIGURE 2.21 – Organisation des travaux de thèse au sein du projet MIMOSA autour du RAPTOR

Enfin, l'impact de la différence de taille de ces concepts sur les performances d'incinération est présenté dans la section 5.1.3.1

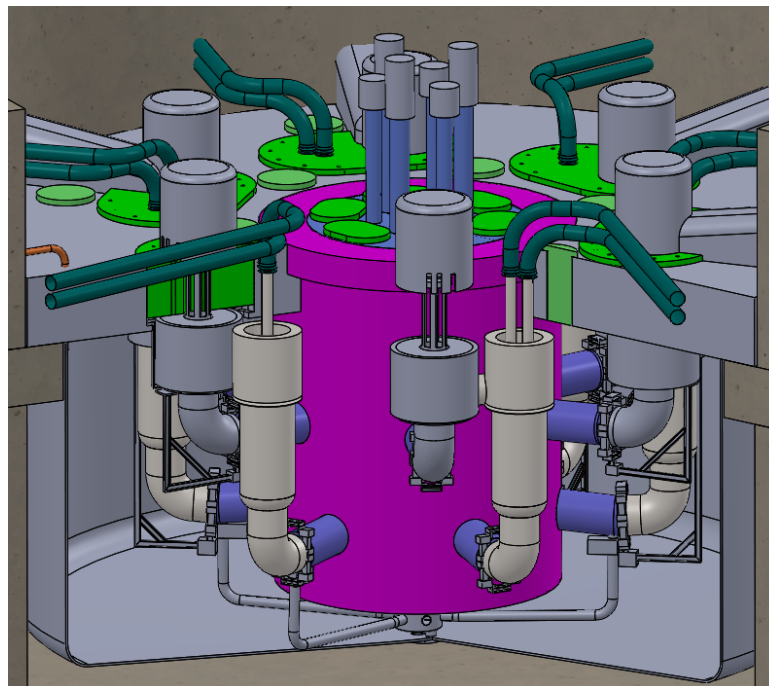


FIGURE 2.22 – Vue conceptuelle d'ARAMIS-A V1.5

2.4.3 ARAMIS-A : pour gérer l'américium d'un parc de RNR-Na français

En parallèle à la collaboration avec le CNRS, Orano a lancé avec le CEA en 2019 le projet ARAMIS (*Advanced Reactor for Actinides Management In Salt*) pour étudier la gestion du plutonium dans des réacteurs à sels fondus pour atteindre la fermeture du cycle après multirecyclage en REP puis dans des RNR-Na [109]. Le réacteur ébauché dans le cadre de ce projet, renommé ARAMIS-P pour Plutonium⁷, a servi de base pour le développement du concept ARAMIS-A dans le cadre du projet national ISAC. Ce concept est lui centré sur la gestion de l'américium (A pour Américium) produit par un parc de RNR-Na à l'échelle française et dont la figure 2.22 montre une vue conceptuelle.

ARAMIS-A est donc un réacteur incinérateur à sels chlorures de composition initiale $\text{NaCl} - \text{MgCl}_2 - \text{PuCl}_3 - \text{AmCl}_3$ avec une puissance de $300 \text{ MW}_{\text{th}}$ et un volume en cœur de $1,2 \text{ m}^3$. Différentes versions du réacteur ont été développées au cours du déroulement du projet ISAC. La figure 2.23 montre l'organisation des travaux présentés dans cette thèse au sein de ce projet autour des différentes versions d'ARAMIS-A définies dans des livrables du projet [110–112] et présentées dans la section 5.2.

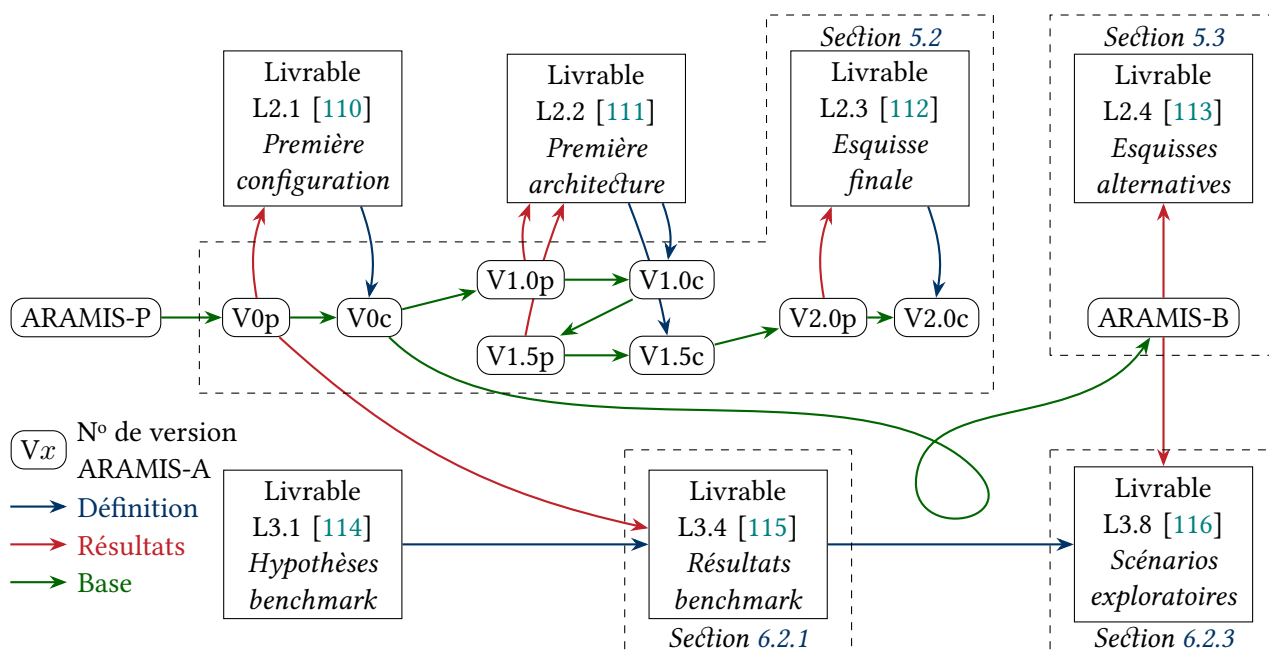


FIGURE 2.23 – Organisation des travaux de thèse au sein du projet ISAC

Toutes les versions d'ARAMIS-A ont le même volume en cœur mais ont des volumes de sel combustible différents, allant de $5,106 \text{ m}^3$ pour les versions V0c et V1p à $8,26 \text{ m}^3$ pour la version V2.0c. Certaines versions ont également des matériaux de structure différents. L'impact du changement des matériaux de structure sur les performances d'incinération des concepts est présenté dans la section 5.2.3.1. ARAMIS-A est alimenté et traité par *batch* tandis que les simulations réalisées au cours de cette thèse sont faites en continu. Cette particularité du code REM utilisé et l'adaptation nécessaire pour mener à bien les calculs dans le projet sont discutées dans la section 5.2.2 et font l'objet d'un paragraphe dans le livrable L2.3 [112].

Au cours du projet, des esquisses alternatives au concept ARAMIS-A ont été développées par les différents acteurs du projet. L'esquisse appelée ARAMIS-B, développée dans le cadre de cette thèse et définie dans le livrable L2.4 du projet [113] est présentée dans la section 5.3.

7. Mais peut également s'interpréter comme « Préliminaire »

Enfin, en parallèle de l'étude et de la conception d'esquisses d'incinérateur, des scénarios ont été réalisés au cours du projet en commençant par la réalisation d'un *benchmark* entre les codes des différents partenaires donnant lieu à la rédaction de livrables [114, 115], d'articles [117] ainsi que l'encadrement d'un stage de 2^e année d'école d'ingénieur [118]. Ce scénario de *benchmark* est présenté dans la section 6.2.1 et les scénarios alternatifs réalisés dans la suite directe du développement de l'esquisse ARAMIS-B, donnant lieu à la rédaction du livrable L3.8 du projet [116] sont présentés dans la section 6.2.3.

💡 À retenir (2.4)

Trois concepts de réacteurs à sels fondus sont étudiés dans le cadre de cette thèse. Le MSFR de référence, réacteur surgénérateur en cycle Th/U, servant de base et de *benchmark* pour le suivi des développements réalisés dans le code de calculs neutroniques en évolution utilisés dans ces travaux de thèse. Le RAPTOR, réacteur incinérateur de transuraniens au cœur des études réalisées dans le cadre du projet européen MIMOSA. Et les différentes versions d'ARAMIS-A, réacteur incinérateur d'américium et au cœur du projet ISAC et dont les capacité d'incinération sont étudiées d'un point de vue neutronique mais également dans l'étude de scénarios de déploiement au sein de cette thèse.

Conclusion du chapitre

Ce deuxième chapitre a présenté quelques notions de chimie des sels fondus utiles à la compréhension du fonctionnement des réacteurs qui constituent le cadre de cette thèse. En particulier, certaines propriétés physicochimiques sont importantes à prendre en compte dans les modélisations, et donc à la compréhension des chapitres 3 et 4, comme par exemple l'électroneutralité du sel ou encore les schémas d'extraction des produits de fission. La mise à jour de ce schéma d'extraction réalisée au cours de cette thèse pour les réacteurs à sels chlorures utilisant du magnésium a été présentée. Un tour d'horizon des différents concepts et familles de réacteurs au cours de l'histoire voit l'apparition des réacteurs RAPTOR et ARAMIS-A, cœur des projets ISAC et MIMOSA. Ces deux réacteurs incinérateurs d'actinides mineurs sont simulés dans le chapitre 5 et déployés à l'échelle parc dans les scénarios du chapitre 6.

II

Deuxième partie

Outils d'étude et développements réalisés

3

Les outils « classiques » autour de la simulation d'un RSF

Sommaire

<i>Introduction du chapitre</i>	73
3.1 Les codes de transport neutronique	73
3.1.1 Principe général	73
3.1.2 Le code MCNP	74
3.2 Les codes de calculs neutroniques en évolution	80
3.2.1 Le schéma de calcul standard	80
3.2.2 Le code SMURE	80
3.3 Spécificités des RSF et adaptation des codes d'évolution	82
3.3.1 Adaptation pour les RSF	82
3.3.2 Le code REM	83
3.3.3 Autres codes d'évolution adaptés aux RSF	91
3.4 Les codes de scénario de déploiement nucléaire	92
3.4.1 Définition pragmatique d'un scénario	92
3.4.2 Le code ISF	92
3.4.3 Autres codes de scénarios existants	94
3.5 Autres codes et outils utilisés dans la thèse	95
3.5.1 Présentation rapide du matériel informatique utilisé	95
3.5.2 L'algorithme Sherlock	95
3.5.3 Le constructeur de géométries REM	96
<i>Conclusion du chapitre</i>	99

Figures

3.1 Exemples de discrétisation multiéchelle de la géométrie d'un REP pour un code déterministe	74
3.2 Parcours de deux neutrons dans les matériaux m et m' en <i>surface tracking</i>	75
3.3 k_{eff} et entropie de Shannon en fonction du nombre de cycles pour différents nombres de neutrons sources	77
3.4 Écart entre la section efficace de capture du ^{240}Pu avec les méthodes multigroupe et ponctuelle	79
3.5 Principe d'un calcul neutronique en évolution	80
3.6 Détail du calcul d'évolution dans SMURE	81
3.7 Organisation des différentes échelles de pas (Illustration)	84

3.8	Principe de fonctionnement du code ERE à son lancement	85
3.9	Exemple d'extraction définie par une usine SUR	86
3.10	Principe d'organisation des pas REM et évolution dans le code REM	87
3.11	Les différents modes d'interpolation f_1 , f_2 et f_3	87
3.12	Illustration de l'organisation des pas REM et évolution dans le code REM	88
3.13	Pictogrammes et conventions colorées des éléments du code ISF	93
3.14	Principe de fonctionnement de l'algorithme ISF à chaque pas	94
3.15	Fichiers de sortie Sherlock illustrant la recherche	95
3.16	Traduction des informations pour construire la géométrie	96
3.17	Les différentes formes gérées par le code ERE	97
3.18	Exemple de construction d'un cœur cylindrique (traduction de la figure 3.16)	98

Tableaux

3.1	Caractéristiques techniques des machines de calcul utilisées pour les simulations (en juin 2025)	95
-----	--	----

Introduction du chapitre

Suite à la présentation détaillée des réacteurs à sels fondus dans les chapitres 1 et 2 une présentation des outils utilisés dans la thèse est réalisée dans ce chapitre. Une première partie (3.1) présente les codes de transport neutronique, utilisés pour la résolution de l'équation de Boltzmann en particulier et sur lesquels s'appuient les calculs neutroniques en évolution dont les codes sont introduits dans la partie suivante (3.2), avec notamment la présentation du code SMURE. Une troisième partie (3.3) parle des spécificités liées aux réacteurs à sels fondus et à l'adaptation nécessaire des codes d'évolution avec la description détaillée et originale du code REM. Une quatrième partie (3.4) présente les codes de scénario permettant la simulation du déploiement de réacteurs électronucléaires avec une présentation du code ISF utilisé dans cette thèse. Une dernière partie (3.5) conclut ce chapitre avec la description d'outils annexes utiles pour ce travail.

3.1 Les codes de transport neutronique

3.1.1 Principe général

Le transport des neutrons dans la matière est régi par l'équation de Boltzmann décrite par la formule (1.17) présentée dans la partie 1.2.2.6. L'équation aux valeurs propres (3.1) décrit cette même équation dans un état **stationnaire** et reformulée en adéquation avec son utilisation dans le cadre de la physique des réacteurs.

$$\vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla} \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E) + \Sigma_{\text{tot}}(\vec{r}, \vec{\Omega}, E) \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E) = Q_s(\vec{r}, \vec{\Omega}, E) + \frac{1}{k_{\text{eff}}} Q_f(\vec{r}, E) \quad (3.1)$$

Cette équation fait le bilan entre l'apparition et la disparition des neutrons dans un volume élémentaire en mettant en relation :

- \vec{r} et $\vec{\Omega}$ les coordonnées spatiales et angulaires des neutrons ;
- E leur énergie ;
- ψ et ϕ les flux neutroniques angulaire et scalaire (1.9) ;
- Σ_{tot} la section efficace macroscopique totale ;
- Q_s le terme de création de neutrons par *scattering* défini par la formule (3.2) avec Σ_s la section efficace macroscopique de diffusion ;
- Q_f le terme de création de neutrons par fission défini par la formule (3.3) avec $\bar{\nu}_p$ le nombre de neutrons prompts créés par fission et χ_p le spectre d'émission de ces neutrons ;
- k_{eff} le coefficient de multiplication effectif des neutrons.

$$Q_s(\vec{r}, \vec{\Omega}, E) = \int_0^{+\infty} dE' \iint_{4\pi} d^2\vec{\Omega}' \Sigma_s(E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}) \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E') \quad (3.2)$$

$$Q_f(\vec{r}, E) = \frac{1}{4\pi} \int_0^{+\infty} dE' \bar{\nu}_p(\vec{r}) \Sigma_f(\vec{r}, E') \chi_p(E' \rightarrow E) \phi(\vec{r}, E') \quad (3.3)$$

Cette équation permet d'évaluer à un instant donné et pour un système spécifique le flux neutronique, le k_{eff} et les taux de réaction : il existe deux méthodes principales pour la résoudre numériquement, la méthode déterministe et la méthode stochastique.

3.1.1.1 Méthodes déterministes

Les calculs déterministes consistent en une discrétisation en espace, en angle et en énergie de l'équation du transport pour la résoudre par des méthodes numériques. Ces calculs permettent d'avoir des temps de calcul relativement courts pour les géométries simples, mais nécessitent certaines approximations, en particulier lors de la résolution de géométries complexes telles que celles retrouvées dans les réacteurs à eau. La figure 3.1 montre un exemple de discrétisation multiéchelle réalisée pour un code déterministe sur la géométrie d'un REP, partant d'un crayon combustible, dont les résultats de calculs peuvent être intégrés dans le calcul d'un assemblage qui lui-même est intégré dans un cœur complet.

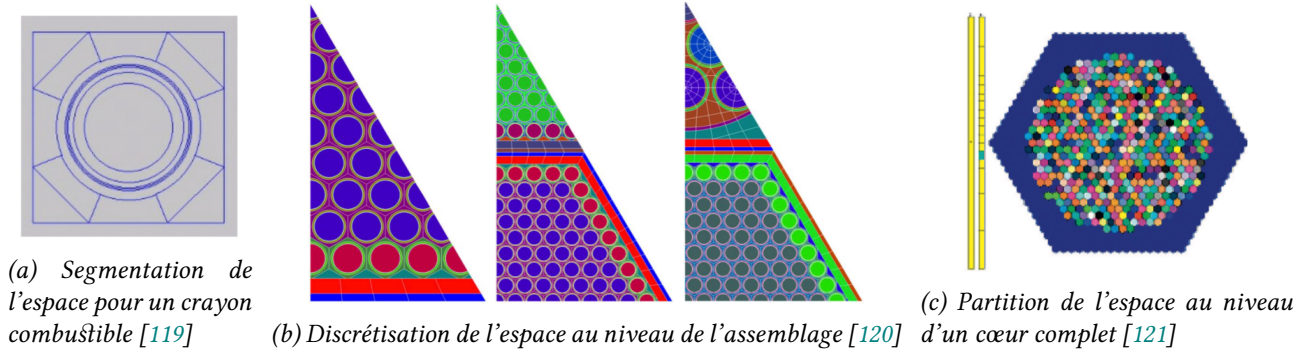


FIGURE 3.1 – Exemples de discrétisation multiéchelle de la géométrie d'un REP pour un code déterministe [67]

Des exemples de code pour ces calculs sont le code APOLLO développé par le CEA, EDF et Framatome depuis les années 1980 [122] et les codes DRAGON (échelle de l'assemblage) et DONJON (échelle cœur complet) développés par l'école polytechnique de Montréal [123].

3.1.1.2 Méthodes stochastiques

Les calculs stochastiques utilisent une méthode probabiliste, dite de Monte-Carlo, consistant à simuler directement et indépendamment un grand nombre de particules tout au long de leur histoire, de leur création à leur disparition. L'indépendance des histoires repose sur le fait que les neutrons n'interagissent pas entre eux en dehors du terme source. Chaque génération de neutrons est simulée indépendamment. Cette méthode permet une modélisation quasi exacte du système complet, au prix d'un coût en temps augmentant fortement avec la précision statistique demandée. Une présentation du principe de fonctionnement des algorithmes stochastiques est donnée dans la section 3.1.2.1.

De nombreux codes de transports stochastiques existent dont le code MCNP utilisé dans le cadre de cette thèse et présenté ci-après. À noter également l'existence des codes suivants : Serpent développé par le centre de recherche technique de Finlande depuis 2004 [124] et également utilisé pour les calculs REP dans le cadre de cette thèse, le code *open source* OpenMC développé depuis 2011 par le MIT [125] et le code TRIPOLI4 développé historiquement par le CEA, EDF et Framatome [126] et aujourd'hui pour la version 5 en développement par le CEA, EDF et l'ASNR (Autorité de Sécurité Nucléaire et de Radioprotection) [127].

3.1.2 Le code MCNP

Le code MCNP (*Monte-Carlo N-Particles transport code*) est développé depuis 1946 par le LANL (*Los Alamos National Laboratory*) aux États-Unis. Sa 5^e version, utilisée durant ces travaux, est sortie en 2003 et est écrite en FORTRAN90 [128]. Les applications de ce code sont multiples et un *focus* est réalisé dans cette section sur le calcul de criticité — évaluation du k_{eff} — et des taux de réaction avec les calculs par générations (appelés « kcode » dans MCNP), par opposition aux calculs « source » dans lesquels cette dernière est fixe et donc non appropriée aux systèmes critiques.

3.1.2.1 Principe de fonctionnement d'un calcul de criticité illustré avec le code MCNP (kcode)

Dans un calcul kcode, un nombre important de neutrons est simulé. Ceux-ci sont répartis dans un certain nombre de cycles; des cycles dits « inactifs » permettant à la distribution des neutrons de converger dans l'espace à partir d'une source initiale contenant n_{src} particules, puis des cycles actifs permettant le calcul des grandeurs d'intérêts (voir section 3.1.2.3). La source de neutrons d'un cycle est issue des neutrons de fissions produits par le cycle précédent, chaque nouveau neutron démarre avec une énergie E_0 calculée à partir du spectre χ_p d'émission des neutrons (voir sections 1.2.2.6 et 3.1.1) et se propage au sein d'un matériau dans lequel il va pouvoir diffuser ou être absorbé. Les neutrons propagés ont un poids w , généralement égal à 1. De façon simplifiée, et pour chaque neutron d'énergie E_k , l'algorithme de MCNP fonctionne ainsi [82] :

1^e) La section efficace totale du matériau m pour l'énergie E_k est calculée (3.4) :

$$\Sigma_{\text{tot}}^m(E_k) = \sum_{i \in m} N_i \sum_{r \in \text{MT}} \sigma_{r,i}(E_k) \quad (3.4)$$

2^e) Une probabilité uniforme $\xi \in [0, 1[$ est tirée permettant le calcul de la distance ℓ_k parcourue par le neutron avec la formule (3.5) :

$$\ell_k = -\frac{\ln(1 - \xi)}{\Sigma_{\text{tot}}^m(E_k)} \quad (3.5)$$

- 3^e)
- Ⓐ Si la distance tirée amène le neutron à sortir de la cellule, le neutron est envoyé dans la direction choisie jusqu'à atteindre la surface délimitant la cellule. À ce stade, une nouvelle distance est tirée avec les sections efficaces de la nouvelle cellule en conservant la première direction.
 - Ⓑ Si le neutron reste dans la cellule après avoir parcouru la distance ℓ_k dans la direction choisie, le noyau puis la réaction que le neutron va subir sont tirées au hasard d'après la fonction de répartition. Si la réaction subie est absorbante, le neutron « meurt » et on passe au neutron suivant. Sinon, une nouvelle énergie E_{k+1} ainsi qu'un nouvel axe de propagation sont tirés et une nouvelle distance ℓ_{k+1} est déterminée en revenant à l'étape 1^e).

La figure 3.2 illustre le parcours d'un neutron apparaissant dans le matériau m avec une énergie E_0 . Le calcul de la section efficace $\Sigma_{\text{tot}}^m(E_0)$ permet de tirer la distance ℓ_0 , puis celui de $\Sigma_{\text{tot}}^m(E_1)$ permet de tirer la distance ℓ_1 . Cette distance fait sortir le neutron du matériau m pour le faire entrer dans le matériau m' , donc le neutron s'arrête à la surface délimitant les deux matériaux. De là, la distance ℓ_2 est tirée avec les sections efficaces $\Sigma_{\text{tot}}^{m'}(E_2)$ dans la même direction, puis une dernière distance ℓ_3 termine par une absorption du neutron par un noyau qui produit par exemple une fission (✳).

Dans la génération suivante, une nouvelle énergie E'_0 est déterminée à partir du spectre de fission permettant de tirer la distance ℓ'_0 puis la distance ℓ'_1 . Enfin, la distance ℓ'_2 conduit le neutron à sortir de la géométrie pour entrer dans une cellule vide, dite d'importance nulle. Il est alors perdu, le code le faisant disparaître (✖) à la surface avant de passer au neutron suivant.

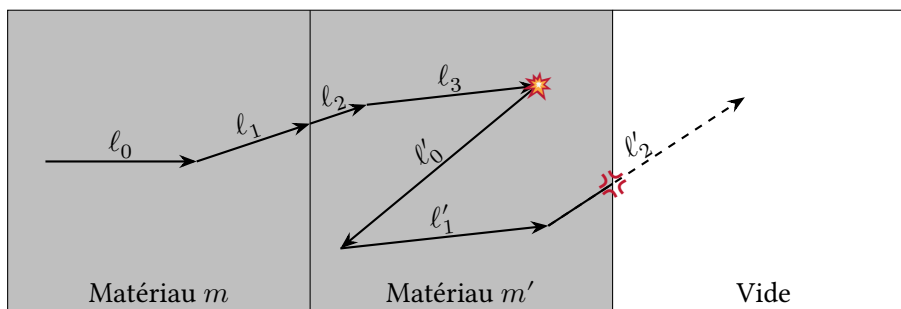


FIGURE 3.2 – Parcours de deux neutrons dans les matériaux m et m' en surface tracking

3.1.2.2 Calcul du k_{eff}

Au cours des différents cycles, MCNP suit l'évolution de la population de neutrons dans le système, génération après génération. Le k_{eff} est défini par le rapport du nombre de neutrons de fission¹ dans deux générations successives [128]. En partant de l'équation de Boltzmann stationnaire (3.1), il est possible de retrouver une définition analogue faisant intervenir au numérateur la production de neutrons de fission et au dénominateur la perte de neutron par fuite, capture (n,0n), fission et par les termes multiplicatifs (n,xn), comme le montre l'équation (3.6) [128].

$$k_{\text{eff}} = \frac{\text{Neutrons de fission dans la génération } n+1}{\text{Neutrons de fission dans la génération } n}$$

$$= \frac{\iiint_V \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} \iint_{4\pi} d^3 \vec{r} dt dE d^2 \vec{\Omega} \bar{v} \Sigma_f \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)}{\iiint_V \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} \iint_{4\pi} d^3 \vec{r} dt dE d^2 \vec{\Omega} (\Sigma_\gamma + \Sigma_f - \sum_x (x-1) \Sigma_{n/xn} + \vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla}) \psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)}$$
(3.6)

Dans les faits, le k_{eff} est estimé de trois manières différentes et le résultat fourni par le code est une combinaison de ces trois estimations selon une méthode de maximum de vraisemblance (cf. interlude 3.1) [129, 130]. Ces trois estimateurs sont respectivement un estimateur de collisions ($k_{\text{eff}}^{\text{C}}$), d'absorption implicite ($k_{\text{eff}}^{\text{A}}$) et de *track-length* ($k_{\text{eff}}^{\text{TL}}$) définis dans les formules (3.7) suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} k_{\text{eff}}^{\text{C}} = \frac{1}{n_{\text{src}}} \sum_j w_j \frac{\sum_{i \in m_j} \bar{v}_i \sigma_{f,i} N_i}{\sum_i \sigma_{\text{tot},i} N_i} \\ k_{\text{eff}}^{\text{A}} = \frac{1}{n_{\text{src}}} \sum_j w_j \frac{\bar{v}_i \sigma_{f,i}}{\sigma_{\text{tot},i}} \\ k_{\text{eff}}^{\text{TL}} = \frac{1}{n_{\text{src}}} \sum_j w_j \ell \sum_i \bar{v}_i \sigma_{f,i} N_i \end{array} \right. \quad (3.7)$$

Avec :

- n_{src} le nombre de particules sources pour le cycle ;
- j toutes les collisions dans un cycle où la fission est possible (cycles actifs) ;
- i tous les noyaux dans le matériau m_j impliqué dans la j^{e} collision ;
- w_j le poids de la particule entrant en collision.

Le $k_{\text{eff}}^{\text{C}}$ est une estimation de la moyenne du nombre de neutrons de fission produits par cycle en prenant la moyenne de tous les noyaux dans le matériau considéré, le $k_{\text{eff}}^{\text{A}}$ ne prend en compte que les noyaux impliqués dans la collision et le $k_{\text{eff}}^{\text{TL}}$ est une estimation du nombre moyen de neutrons de fission produits dans un cycle par neutron de fission nominal.

3.1.2.3 Convergence et entropie de Shannon

Puisque les neutrons sources d'un cycle partent des positions des fissions produites lors du cycle précédent, il est nécessaire de s'assurer que ces positions aient convergé dans le combustible. Cette mesure peut se faire via l'entropie de Shannon qui est une image intuitive de l'uniformité des sources présentes dans la simulation. Les cycles inactifs permettent la propagation de cette information sans faire de calculs de taux de réaction, avant de passer la main aux cycles actifs correspondant à un système critique. La figure 3.3 montre l'évolution du k_{eff} (à gauche) et de l'entropie (à droite) en fonction du nombre de cycles pour différentes valeurs de n_{src} dans une simulation du MSFR de référence.

1. Un neutron de fission est un neutron produit par une fission, à l'inverse des neutrons produits par réaction (n,2n) par exemple.

⊕ Interlude 3.1 : Le calcul du k_{eff} combiné dans MCNP

Soient $i, j \in \{C, A, TL\}$, M le nombre de cycles actifs et $\forall i, \sigma^i$ la variance de l'estimateur k_{eff}^i .

Il est possible de définir la covariance σ^{ij} avec la formule (3.8) [128] :

$$\sigma^{ij} = \frac{1}{M} \sum_{m=1}^M k_{\text{eff}}^i k_{\text{eff}}^j - \left(\frac{1}{M} \sum_{m=1}^M k_{\text{eff}}^i \right) \left(\frac{1}{M} \sum_{m=1}^M k_{\text{eff}}^j \right) \quad (3.8)$$

Par définition, $\sigma^{ii} = \sigma^i$. Il est également possible de définir la corrélation ρ^{ij} entre deux estimateurs avec la formule (3.9). Ces corrélations sont données en sortie du code MCNP et permettent de retrouver les covariances.

$$\rho^{ij} = \frac{\sigma^{ij}}{\sqrt{|\sigma^i \sigma^j|}} \quad (3.9)$$

En notant Γ la matrice de covariances, \vec{k} le vecteur des estimateurs et $\vec{1}$ un vecteur composé de 1, il est possible de retrouver le k_{eff} et sa variance σ avec les formules (3.10) [131].

$$k_{\text{eff}} = \frac{\vec{1}^T \Gamma^{-1} \vec{k}}{\vec{1}^T \Gamma^{-1} \vec{1}} \quad \sigma = \sqrt{\frac{1}{\vec{1}^T \Gamma^{-1} \vec{1}}} \quad (3.10)$$

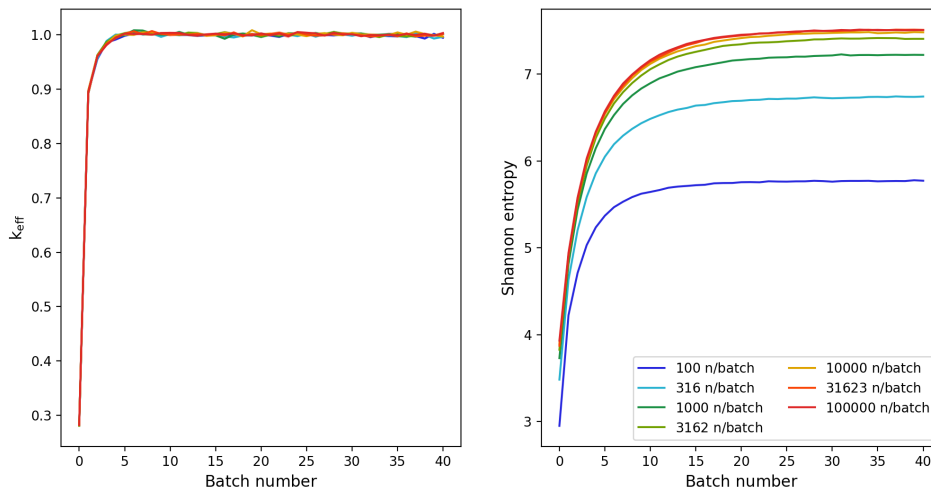


FIGURE 3.3 – k_{eff} et entropie de Shannon en fonction du nombre de cycles pour différents nombres de neutrons sources

Plusieurs remarques sont importantes :

- le k_{eff} peut converger plus vite que l'entropie, prouvant qu'il n'est pas la seule observable à regarder ;
- le nombre de cycles inactifs à choisir correspond au nombre de cycles nécessaire à la convergence de l'entropie – dans cet exemple, 25 suffisent ;
- à partir d'un certain nombre de neutrons sources, la valeur convergée de l'entropie n'évolue plus, signifiant que l'uniformité de la statistique est atteinte (c'est une condition nécessaire – mais pas suffisante – pour garantir qu'il n'y a pas de *clusters* de neutrons).

3.1.2.4 Calcul du flux

Dans la suite de ce travail de thèse, les grandeurs pertinentes évaluées avec le code MCNP le sont grâce au *tally* f4 permettant de mesurer le flux volumique au sein d'une cellule c , normalisé au nombre de neutrons sources. Les *tallies* sont assimilables à des détecteurs présents dans la simulation MCNP. Pour une certaine énergie E , le flux peut se formuler comme étant la somme des distances ℓ_k parcourues par les neutrons à cette énergie E pondérée par le volume V_c de la cellule c [132], cf. formule (3.11) :

$$\phi_c(E) = \frac{\sum_k \ell_k(E)}{V_c} \quad (3.11)$$

Le *tally* f4 permet de calculer le flux moyenné en énergie dans la cellule c^2 , formule (3.12). Ce flux est exprimé en $\text{n cm}^{-2} \text{n}_{\text{source}}^{-1}$.

$$\langle \phi_c \rangle = \int_0^{+\infty} dE' \phi_c(E') \quad (3.12)$$

Il est à noter qu'en remultipliant ce flux par le volume de la cellule, il est possible de retrouver la distance moyenne parcourue par les neutrons dans ladite cellule (de quelques centimètres dans un réacteur thermique à quelques dizaines de centimètres dans un réacteur rapide [43]).

3.1.2.5 Calcul des taux de réaction

Il est possible de multiplier le *tally* f4 par une section efficace³ pour calculer un taux de réaction, correspondant au nombre de réactions r au sein d'un matériau m inclus dans une cellule c et dont le calcul est présenté par la formule (3.13) :

$$\langle \sigma_r^m \phi_c \rangle = \int_0^{+\infty} dE' \sigma_r^m(E') \phi(E') \quad (3.13)$$

Pour retrouver la section efficace moyenne de la réaction r dans un matériau m , il suffit de diviser les deux valeurs du *tally* f4, voir formule (3.14) :

$$\langle \sigma_r^m \rangle = \frac{\langle \sigma_r^m \phi_c \rangle}{\langle \phi_c \rangle} \quad (3.14)$$

3.1.2.6 Calcul rapide avec le spectre

Il est possible de découper le *tally* f4 en énergie⁴ – sur un *binning* énergétique – et ainsi pouvoir tracer le spectre (comme présenté figure 1.16 page 20).

Le spectre multiplié par une section efficace permet de retrouver un taux de réaction. Cette méthode – appelée multigroupe par opposition à la méthode ponctuelle – permet de faire des économies en termes de temps de calcul MCNP pour calculer de façon approximative de nombreux taux de réaction puisqu'il suffit de calculer le spectre. Cependant, les résonances des sections efficaces n'étant pas alignées sur les *bins* en énergie du spectre, cette méthode peut fausser les résultats si le nombre de *bins* n'est pas suffisant. La figure 3.4 montre, pour l'exemple, l'écart entre la section efficace de capture du ^{240}Pu entre le calcul direct avec MCNP (formule (3.14)) et la multiplication du spectre avec la section efficace (provenant de la base de données JEFF-3.3 [133]) en fonction du nombre de *bins* utilisées dans le *tally* f4.

2. La ligne à écrire dans MCNP étant « f k4 : n c » avec $k \in \llbracket 0, 999 \rrbracket$

3. En utilisant la carte « f m k4 (1 m r) » avec m le matériau considéré et r la réaction d'intérêt

4. En utilisant la carte « e k4 » suivie des valeurs d'énergie d'intérêt

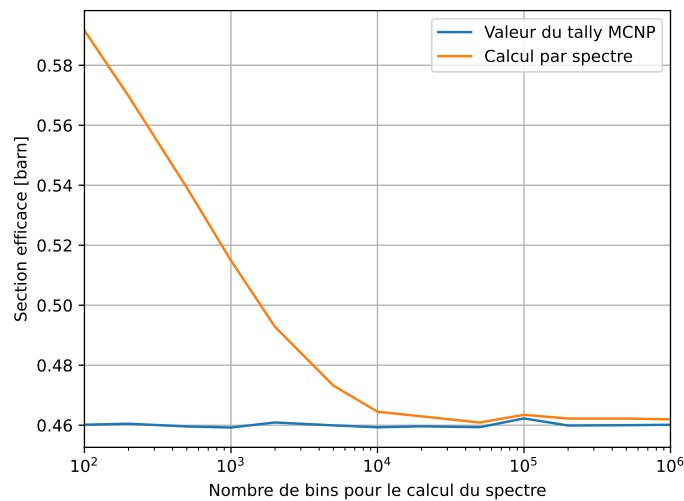


FIGURE 3.4 – Écart entre la section efficace de capture du ^{240}Pu avec les méthodes multigroupe et ponctuelle

L'écart relatif entre les deux valeurs est de 12,12 % à 1000 *bins*, 1,13 % à 10 000 *bins* et tombe en dessous des 0,5 % à partir de 50 000 *bins*. Certains algorithmes comme le code SMURE utilisent des méthodes mixtes avec un calcul ponctuel pour l' ^{238}U et du multigroupe pour les autres noyaux [134]. Dans la suite de ce travail, les calculs MCNP sont faits avec 1000 *bins* pour le calcul du spectre ne servant qu'à titre illustratif et les taux de réaction seront tous déterminés ponctuellement avec le *tally* f4 pour maximiser la précision.

3.1.2.7 Autour de MCNP : une remarque sur les sections efficaces

Un calcul MCNP est lancé avec un fichier appelé « *xmdir* » listant les fichiers de sections efficaces à utiliser. Chaque fichier est associé à un code, traditionnellement sous la forme *ZZAAA.nc* avec *ZZ* et *AAA* les charges et numéros atomiques de l'isotope et *n* un entier correspondant à une température et à un isomère. Par exemple, il pourrait se trouver dans ce fichier les codes 95242.01c et 95242.02c décrivant respectivement les sections efficaces de l' ^{242}Am à 800 K et de l' ^{242m}Am à 895 K. Il est donc nécessaire de créer les fichiers de sections efficaces correspondant à la température désirée en amont de la simulation MCNP. Ce traitement est fait dans ces travaux avec le code NJOY (*Nuclear Data Processing System*) [135] en prenant pour sources les fichiers de bases de données nucléaires au format ENDF (*Evaluated Nuclear Data File*) [136]. Enfin, le code *makssf* (*Make Cross-Section Files*) est utilisé pour générer le fichier *xmdir* après avoir traduit les fichiers au format ACE ASCII en binaire [137].

💡 À retenir (3.1)

Les codes de transport neutronique, déterministes ou stochastiques, permettent de calculer le flux, le k_{eff} et les taux de réaction qui sont utilisés dans les travaux de thèse. Le code de transport utilisé dans le cadre de cette thèse est MCNP.

3.2 Les codes de calculs neutroniques en évolution

3.2.1 Le schéma de calcul standard

Les calculs neutroniques dits « en évolution » consistent en la résolution des équations de Bateman (présentées dans la section 1.12 page 18) couplée à des calculs de transports. Dans le schéma de calcul standard, ces équations ont la forme présentée dans l'équation (3.15) et décrivent l'évolution des matières — leur apparition et leur disparition — entre deux pas de temps.

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j \neq i} \langle \sigma_{j \rightarrow i} \phi \rangle N_j(t) - \sum_{j \neq i} \langle \sigma_{i \rightarrow j} \phi \rangle N_i(t) + \sum_{j \neq i} \lambda_{j \rightarrow i} N_j(t) - \lambda_i N_i(t) \quad (3.15)$$

La figure 3.5 illustre le principe d'un calcul d'évolution :

- 1^e) Le système est défini dans sa configuration initiale au niveau de sa géométrie, des matériaux $N_{i,0} = N_i(0)$, des paramètres de la simulations ainsi que des données nucléaires (les λ_i et $\lambda_{j \rightarrow i}$ et les sections efficaces permettant de construire l'arbre de décroissance radioactive des noyaux).
- 2^e) L'équation du transport statique est résolue en utilisant un code de transport neutronique (par exemple avec MCNP ou Serpent) afin d'obtenir le k_{eff} et les taux de réaction $\langle \sigma \phi \rangle_0$ au démarrage.
- 3^e) Les équations de Bateman (3.15) sont résolues entre $t = 0$ et $t = \Delta t_1$ avec l'injection des données calculées afin de déterminer l'évolution des matériaux au pas suivant $N_i(\Delta t_1)$. Cette évolution peut être contrôlée : par exemple, afin de garantir une puissance thermique — définie par la formule (3.16) — constante, une renormalisation des taux de réaction peut être effectuée.

$$P_{\text{th}} = \sum_i \langle \sigma_{f,i} \phi \rangle(t) \varepsilon_i N_i(t) \quad (3.16)$$

- 4^e) Les nouvelles proportions et quantités sont injectées dans le calcul du transport, qui mettent à jour les grandeurs neutroniques pour le calcul d'évolution suivant et ainsi de suite jusqu'à la fin de la simulation.

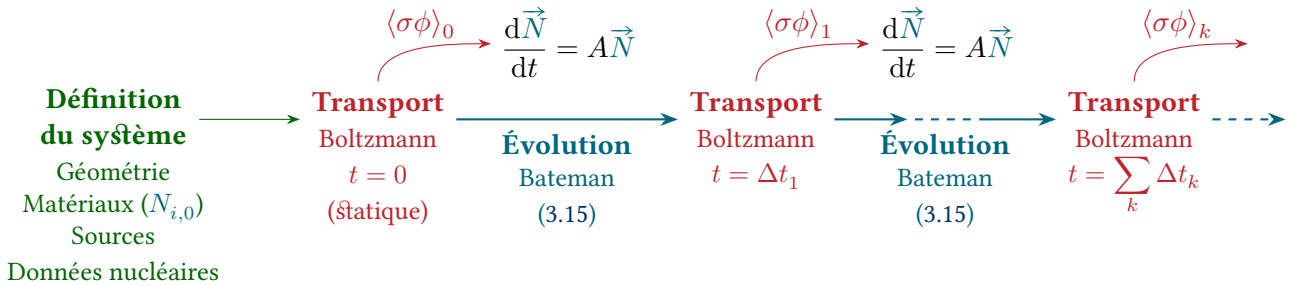


FIGURE 3.5 – Principe d'un calcul neutronique en évolution (inspiré de [134])

3.2.2 Le code SMURE

Le code SMURE (*Serpent-MCNP Utility for Reactor Evolution*) est développé par différents laboratoires de l'IN2P3 depuis 2005 [134]. Il est écrit en C++ et permet d'utiliser soit le code MCNP soit le code Serpent2 pour résoudre la partie transport et donne le choix entre la méthode de résolution numérique de Runge-Kutta d'ordre 4 (RK4) — présentée dans l'interlude 3.2 — ou l'algorithme CRAM (*Chebyshev Rational Approximation Method*) pour la résolution des équations de Bateman [134]. Ce code permet en outre de coupler les calculs neutroniques en évolution avec des considérations thermohydrauliques. Par ailleurs, l'accès aux sources permet de facilement modifier ou adapter le schéma de calcul aux besoins ; notamment en ajoutant des contrôles contraignant l'évolution. La figure 3.6 présente le principe de fonctionnement de ce code en détaillant les étapes présentées par la figure 3.5 [138] :

- le code va dans un premier temps configurer et définir le système simulé : les matériaux, la géométrie, les paramètres d'évolution. Puis, il va créer l'arbre des décroissances et les fichiers d'input nécessaires au lancement du code Monte-Carlo ;
- le 1^{er} calcul Monte-Carlo est lancé et le premier inventaire (sauvegardé dans le 1^{er} fichier DATA) est créé avec les données calculées ;
- tant que le code doit faire un pas d'évolution, les équations de Bateman sont résolues suivies d'un calcul Monte-Carlo et enfin de la création d'un fichier DATA.

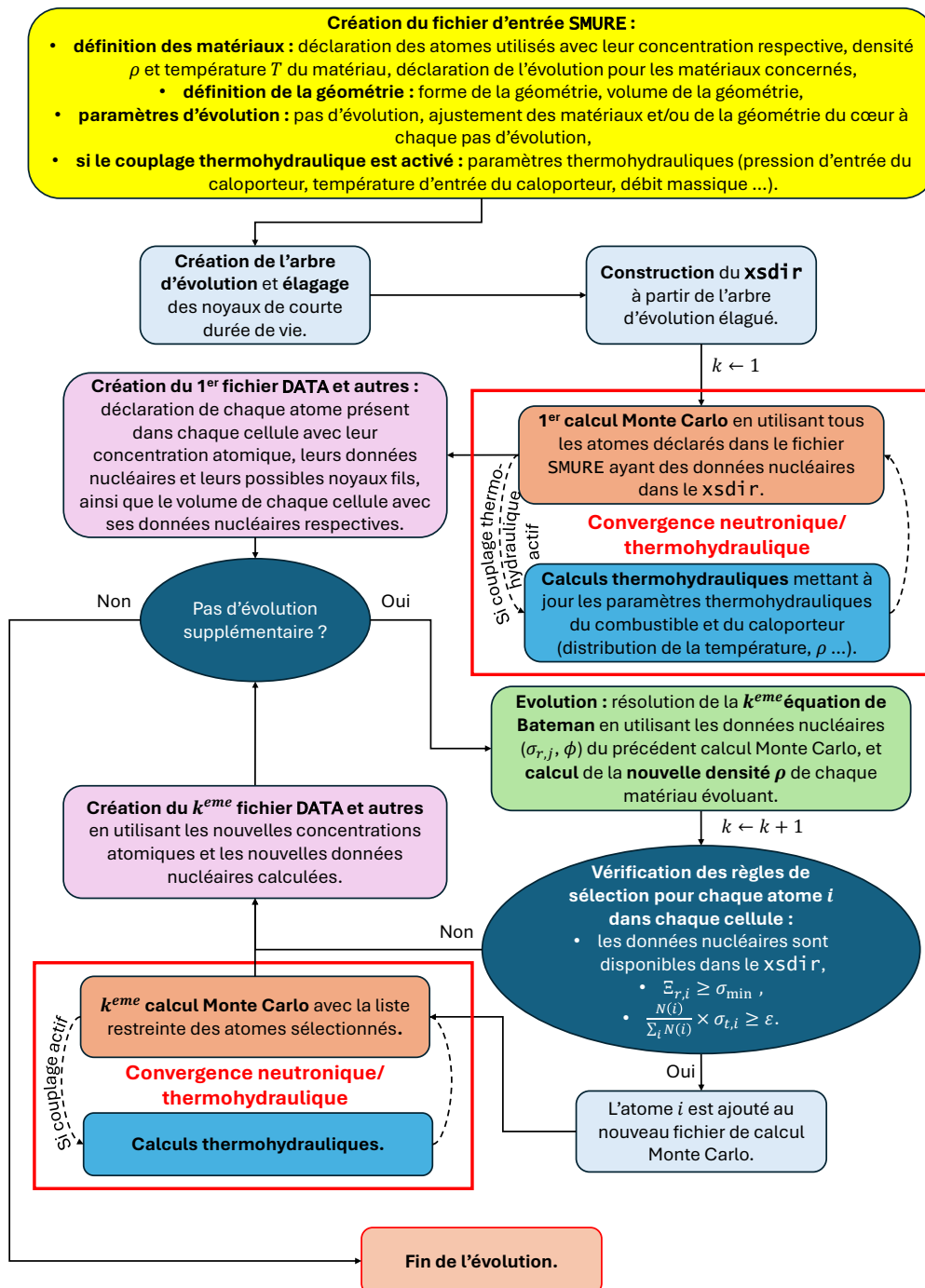


FIGURE 3.6 – Détail du calcul d'évolution dans SMURE [138]

Des développements permettant l'intégration d'un modèle simplifié de réacteurs à sels fondus ont été réalisés dans le code SMURE en modifiant le schéma de calcul standard présenté précédemment dans le cadre de mon stage de fin d'études en école d'ingénieur réalisé chez Orano DRD [105]. Ceux-ci sont précisés dans la section 3.3.3.2. Dans le cadre de cette thèse, ce code est utilisé pour le calcul de l'évolution des matériaux dans les réacteurs à eau pressurisée dans l'objectif de pouvoir calculer les vecteurs isotopiques du plutonium et des actinides mineurs sortant de ces réacteurs afin de permettre leur intégration dans les scénarios de déploiement du chapitre 6.

D'autres codes d'évolution peuvent être cités comme par exemple VESTA [139] ou encore des modules résolvant les équations de Bateman dans les codes boltzmanniens Serpent2 [124] et OpenMC [125].

💡 À retenir (3.2)

Les codes d'évolution neutronique permettent de calculer l'évolution des matériaux en couplant des codes de transport résolvant l'équation de Boltzmann avec des modules d'évolution résolvant les équations de Bateman. Le code utilisé dans le cadre de cette thèse pour l'évolution des REP est SMURE.

3.3 Spécificités des RSF et adaptation des codes d'évolution

3.3.1 Adaptation pour les RSF

Dans la simulation de la plupart des réacteurs — dont les réacteurs à eau — permettant d'estimer des bilans matières centrés sur le plutonium et les actinides mineurs, il est fait souvent la simplification de ne pas simuler d'entrées ou de sorties de matières durant l'évolution. En revanche, le fonctionnement de la majorité des RSF — dont le traitement du combustible se fait durant le fonctionnement du réacteur — nécessite l'ajout de termes supplémentaires dans les équations de Bateman afin de prendre cela en compte. Il est ainsi nécessaire d'adapter le schéma de calcul standard tel que celui présenté dans la partie précédente afin d'y ajouter des alimentations et des extractions de sels durant l'évolution.

3.3.1.1 Extraction continue des PF insolubles par bullage

Certains produits de fission sont insolubles dans le sel combustible — leur identification étant en cours d'amélioration continue, voir chapitre 2 — et vont *a priori* être extraits (naturellement ou par saturation active du sel en gaz) de la majorité des systèmes. Cette extraction peut être modélisée dans les codes d'évolution par l'ajout d'une pseudodécroissance des éléments concernés dans l'équation de Bateman (3.15). Cette pseudodécroissance est définie avec une constante de temps liée aux coefficients de partage de ces éléments dans le sel considéré [140] et est illustrée par l'équation (3.17) :

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda_i^{\text{bullage}} N_i(t) \quad (3.17)$$

3.3.1.2 Première méthode : simulation par échanges continus

Certains concepts de réacteurs à sels fondus étudiés notamment par le CNRS, tels que le MSFR de référence et le RAPTOR présentés dans la section 2.3 pourtant prévus pour être alimentés par *batch*, sont simulés avec une gestion continue des alimentations et des extractions. Le traitement du sel en continu est modélisé, pour ces deux concepts, par un débit d'extraction qui peut être défini comme étant proportionnel à la quantité du sel présent en cœur au premier ordre [82]. Cela se traduit numériquement par l'ajout d'une constante de temps de traitement pour les isotopes concernés dans l'équation de Bateman tel qu'illustré par l'équation (3.18).

$$\frac{dN_i}{dt} = -\lambda_i^{\text{traitement}} N_i(t) \quad (3.18)$$

L'alimentation continue va consister numériquement en un débit source dans l'équation de Bateman, illustré par l'équation (3.19).

$$\frac{dN_i}{dt} = S_i(t) \quad (3.19)$$

Cette source dépend du temps et sa valeur est ajustée au cours de l'évolution afin de respecter certains critères et paramètres. L'ajout d'un terme source dépendant du temps dans l'équation de Bateman (3.15) complexifie significativement son intégration entre deux calculs Monte-Carlo. Le code de référence en France dans la résolution des calculs d'évolution adaptés aux réacteurs à sels fondus, le code REM présenté dans la section suivante, simule cette méthode d'alimentation et d'extraction continues ; le bullage étant considéré comme les autres extractions.

3.3.1.3 Méthode alternative : simulation par *batch*

Une méthode alternative aux échanges continus consiste à extraire le sel à traiter et à alimenter en sel neuf qu'à certains instants précis au cours de la simulation de l'évolution. Cette méthode se traduit numériquement par une conservation des équations de Bateman du schéma classique — avec toutefois l'ajout de la constante de pseudodécroissance inhérente au bullage. À certains instants, définis en amont, les codes de calculs par *batch* vont retirer une partie du sel destinée au traitement et alimenter une quantité de sel optimisée afin de répondre à certains critères et paramètres. Cette étape est traditionnellement opérée à la fin d'un pas d'évolution et est suivie par le calcul Monte-Carlo, ce qui peut augmenter de manière significative le nombre de calculs Monte-Carlo réalisés au cours d'une évolution. Tous les codes de calculs neutroniques en évolution développés en France et présentés succinctement dans la section 3.3.3 simulent cette stratégie alternative par *batch*.

3.3.1.4 Réflexions préliminaires sur les différentes méthodes d'échanges au regard des simulations numériques

Ces deux stratégies d'alimentation et d'extraction — continues ou par *batch* — impliquent des réflexions et une philosophie différente lors de la mise en place des paramètres d'évolution. La section 5.2.2.2 reviendra en détail sur une comparaison plus poussée des deux stratégies appliquées au réacteur ARAMIS-A V0p.

3.3.2 Le code REM

Cette section vise à fournir une description détaillée du code REM et de son fonctionnement avant le début de ces travaux, une telle description n'existant pas jusqu'à présent. Ce travail d'analyse du code réalisé durant la thèse a été nécessaire afin de comprendre certaines limitations du code, identifiées notamment dans la thèse de Laura Mesthiviers [27], et de proposer les évolutions qui font l'objet du chapitre 4. Cela devrait faciliter également la prise en main de ce code par de futures utilisatrices et utilisateurs.

3.3.2.1 Présentation

Le code REM (Réaliser une Évolution avec MCNP), code neutronique en évolution piloté par la précision et adapté à la modélisation des réacteurs à sels fondus, est développé depuis la fin des années 1990 dans un environnement de programmation écrit en langage C et appelé DALI [141, 142]. Au cours des années et des doctorantes et doctorants de l'équipe MSFR, le code a reçu plusieurs améliorations notables dont les travaux présentés dans cette thèse constituent les plus récents. Ce code fonctionne en couplage avec différents modules développés dans DALI au fil des années :

- ERE (Évolution d'un Réacteur) est un module de contrôle avancé des éléments de REM, en particulier sur la géométrie, les contrôles et les alimentations [82] ;

- **IME (Intégration des Matrices d'Évolution)** est le module en charge de résoudre les équations de Bateman;
- **SUR (Simuler une Unité de Retraitement)** est le module permettant de définir les usines de traitement du combustible [91];
- **CGM (Construteur de Géométrie MCNP)** est le module permettant de configurer et de créer les fichiers d'entrée MCNP;
- **LTM (Lecture de Tally MCNP)** est un module spécialisé dans la lecture des fichiers « m » de MCNP afin de récupérer la valeur des *tallies*.

Tous ces modules fonctionnent ensemble et s'appellent les uns et les autres. Le code fonctionne en divisant le temps d'évolution en trois niveaux de pas représentés dans la figure 3.7 :

- le pas REM, le plus grand, est séparé par deux calculs MCNP et a une longueur variable régie par les paramètres explicités dans la section 3.3.2.3;
- le pas ERE intervient au cours de l'évolution pour changer la valeur des alimentations S_i dans l'équation de Bateman. Le calcul de ces valeurs est expliqué dans la section 3.3.2.4;
- enfin, le pas IME est le pas le plus fin s'occupant de l'intégration de l'équation de Bateman. Cette intégration est le sujet de la section 3.3.2.5.

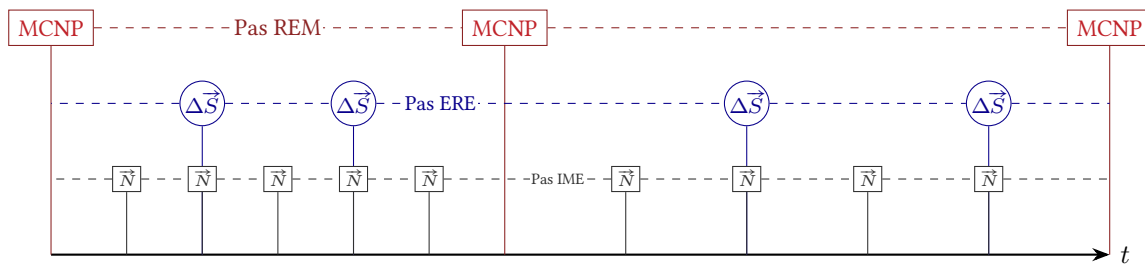


FIGURE 3.7 – Organisation des différentes échelles de pas temporels (Illustration, inspiré de [90])

La figure 3.8 schématise le fonctionnement du code lors du lancement du module ERE :

- dans un premier temps, les différents fichiers de configuration de la simulation sont lus et pris en compte. Les annexes C - 1 et C - 2 explicitent les différentes options disponibles pour ERE et REM;
- le module ERE passe ensuite la main à REM et à sa classe principale faisant le couplage entre le transport et l'évolution tout en ajustant la longueur des pas MCNP variables. Cette exécution des pas variables est décrite dans la section 3.3.2.3;
- le module REM va créer l'inventaire de noyaux initial. Pour ce faire, il va donner la main au module ERE qui va définir, déclarer et construire la géométrie du réacteur (cf. section 3.5.3.2), les usines de traitement (cf. section 3.3.2.2) et les alimentations contrôlées (cf. section 3.3.2.4). Une fois cette initialisation faite, le fichier xsdir est fabriqué avec l'appel des codes NJOY et makxsf si nécessaire⁵ (cf. section 3.1.2.7) et enfin, le module CGM construit le fichier d'entrée MCNP qui sera lancé par la suite afin de pouvoir récupérer la valeur du k_{eff} et des taux de réaction;
- le module REM va ensuite préparer l'évolution en transitant via le module ERE afin de déclarer les données nécessaires à IME pour la réaliser. Le pas REM est ensuite découpé en pas IME dans lesquels les équations de Bateman sont intégrées après quelques calculs présentés dans la section 3.3.2.5. À chaque pas ERE – ou pas d'ajustement – le module IME redonne la main au module REM afin de corriger la densité des matériaux simulés (voir section 2.1.3.1) avant de laisser le module ERE contrôler les contraintes et ajuster les alimentations $S(t)$ en conséquence (cf. sections 3.3.2.4 et 4.2.2.2). Une fois

5. Cette opération est nécessaire lorsqu'une simulation est lancée avec une nouvelle température ou une nouvelle base de données pour créer les fichiers idoines.

les nouveaux débits calculés, le module ERE redonne la main au module REM qui déclare ceux-ci au module IME afin que ce dernier puisse les mettre à jour pour l'intégration du pas suivant. Une fois la totalité du pas REM parcouru, le module IME transmet les données calculées au module REM qui peut construire l'inventaire suivant.

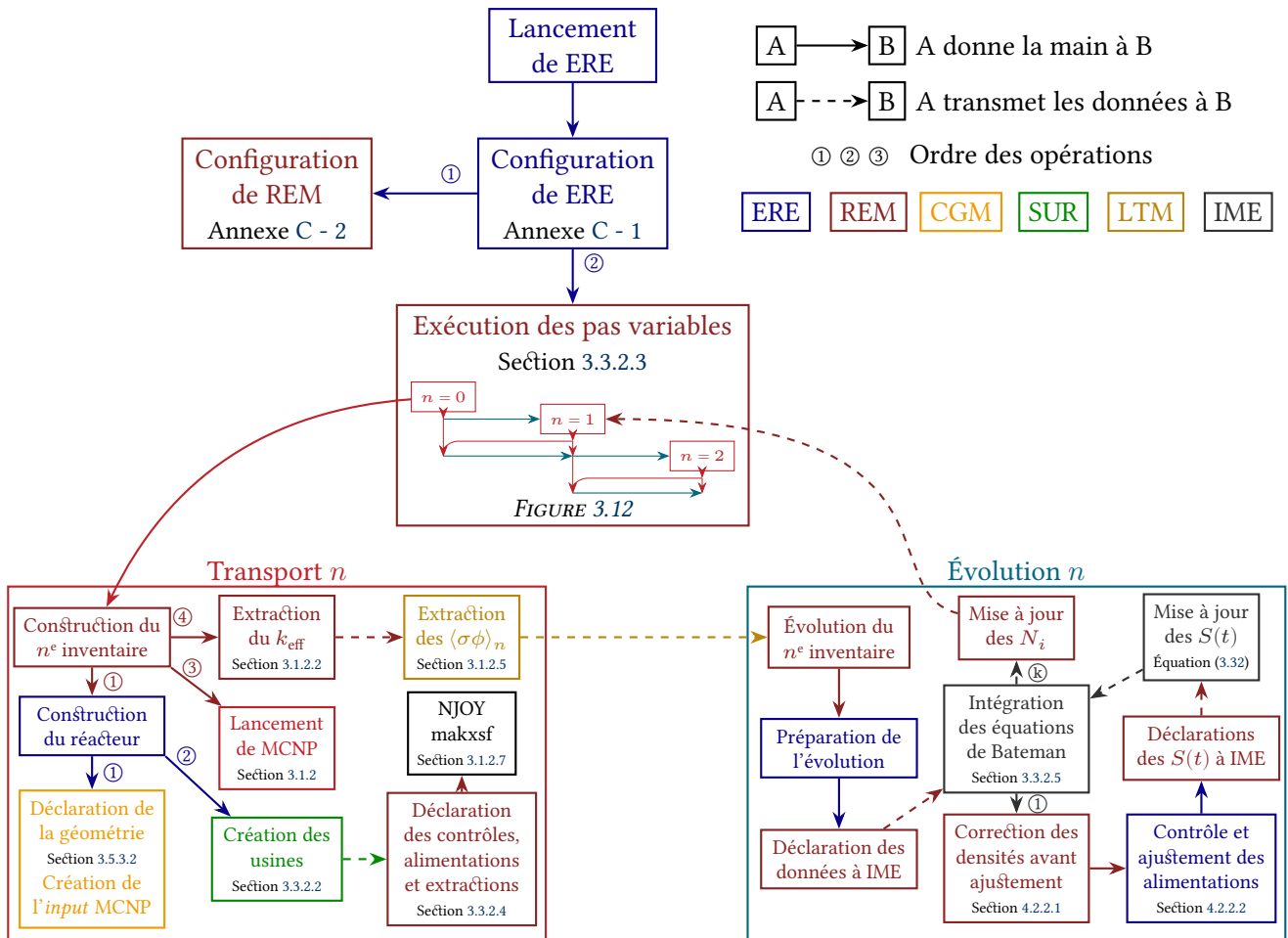


FIGURE 3.8 – Principe de fonctionnement du code ERE à son lancement

Même si le premier module lancé est en réalité le module ERE, le code dans sa globalité est appelé REM dans toute la suite de ces travaux et dans la littérature.

3.3.2.2 Initialisation de l'évolution : les usines de traitement

Plusieurs paramètres sont initialisés avant le lancement de l'évolution. Parmi eux, les usines de traitement sont définies à l'aide des fichiers binaires créés par le module SUR. Une usine est définie avec plusieurs éléments décrits par différents modules :

- une EXTRACTION contenant la liste des éléments extraits (cf. chapitre 2);
- une POMPE associée au temps de vidange de ces éléments;
- des RESERVOIRS par lesquels vont pouvoir transiter les éléments et permettant de simuler une mobilisation ou de calculer un débit;
- un STOCKAGE en bout de chaîne;
- des PIÈGES pour séparer les éléments dans l'usine ainsi que divers TUYAUX et INJECTIONS pour connecter le tout.

Il est important de noter qu'au sein du code REM et de ses modules associés, un élément est non seulement défini par ses numéros isotopiques (Z, A, I) ainsi que par le composite et la cellule dans lequel il se trouve, mais aussi par son mode. Le mode par défaut, quand l'élément est présent dans le réacteur, est le mode 0. Un élément ($Z, A, I, 0$) est présent dans le réacteur, dans ses cellules et ses matériaux, et donc dans le calcul du transport réalisé par MCNP. Autrement dit, cet élément est impacté – et a éventuellement un impact – sur le flux neutronique. Quand cet élément est extrait du système par une usine, celui-ci va changer de mode. Les modes attribués aux différents éléments construits par le code SUR sont numérotés dans l'ordre de déclaration en commençant par 100. Un élément (Z, A, I, m) présent dans le mode $m \neq 0$ est neutre et indépendant vis-à-vis du flux neutronique : il n'« existe » plus au sens de la géométrie MCNP. Il peut cependant toujours décroître naturellement ou pseudodécroître vers un nouveau mode m' (cf. sections 3.3.1.1 et 3.3.1.2). La figure 3.9 montre un exemple d'usine SUR :

- un élément va être extrait du réacteur (par exemple du cœur) vers le mode 100 avec une pseudo-période exprimée par la formule (3.20) :

$$t_{1/2}^{0 \rightarrow 100} = \frac{\ln 2}{\lambda_{0 \rightarrow 100}} = \tau^{0 \rightarrow 100} \ln 2 \quad (3.20)$$

- la pompe associée au mode 100 va l'envoyer dans le réservoir 101 dans lequel il va rester en moyenne durant $\tau^{100 \rightarrow 101}$ secondes avant de pseudo-décroître vers le réservoir 102 ;
- une fois dans le réservoir 102, l'élément va y rester jusqu'à la fin de l'évolution tout en continuant à apparaître dans les équations de Bateman, cf. équation (3.32) présentée dans la section 3.3.2.5.

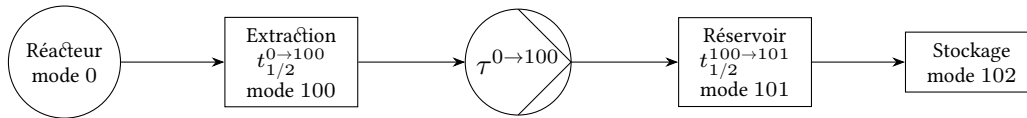


FIGURE 3.9 – Exemple d'extraction définie par une usine SUR

3.3.2.3 Le pas REM : un pas d'une longueur variable

La figure 3.10 montre la structure et l'organisation du calcul entre deux calculs MCNP (représentés par les rectangles labellisés « MCNP_n ») et les pas d'évolution (rectangles bleus dans la figure 3.10 et représentés par les flèches traitillées entre t_n et t_{n+1} dans la figure 3.12) du début du calcul à la fin du calcul.

La figure 3.12 illustre cette structure, décrite ci-après, en représentant une simulation du début du calcul au pas de temps t_2 . Au début de la simulation, différents paramètres sont renseignés au code REM :

- le temps total de la simulation t_{fin} ;
- la longueur du premier pas REM Δt_1 ;
- le coefficient de précision pour le $k_{\text{eff}} c_k$;
- le coefficient de précision pour le test du $\chi^2 c_\chi$;
- la fonction d'interpolation f_i qui peut être une rampe (f_2), une *spline* (f_3) ou la moyenne entre les deux valeurs renseignées (f_1) ;
- les coefficients χ_{min}^2 et χ_{max}^2 .

Chaque pas REM a une longueur dynamique Δt_n ajustée ainsi :

- 1^e) Si le code n'a pas encore atteint le temps final t_{fin} , une première évolution est réalisée entre t_{n-1} et $t_n = t_{n-1} + \Delta t_n$ en utilisant les réactions $\langle \sigma \phi \rangle_{n-1}$ dans l'équation de Bateman. Arrivé à t_n , le code REM connaît les proportions N_i et le k_{eff} estimé par le module IME, présenté dans la formule (3.26) et appelé ici simplement k .

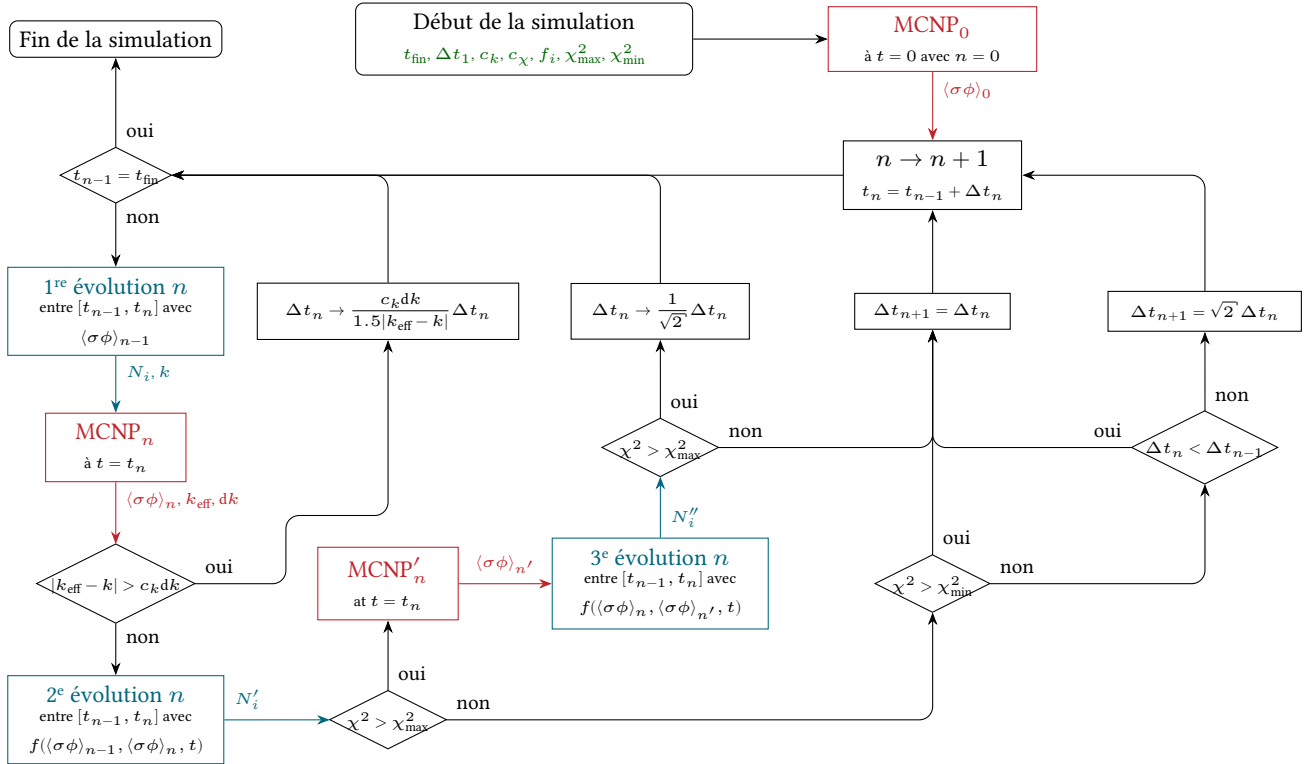
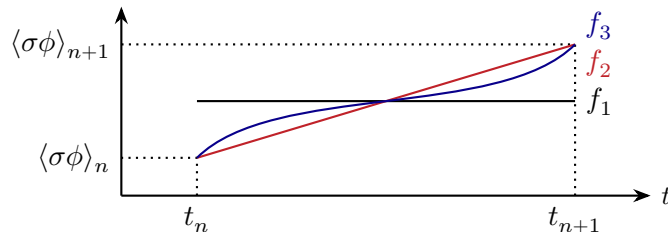


FIGURE 3.10 – Principe d'organisation des pas transport et évolution dans le code REM [143]

- 2e) L'équation du transport est résolue en lançant MCNP_n ce qui donne les réactions mises à jour $\langle \sigma \phi \rangle_n$ et le k_{eff} MCNP avec sa variance associée dk .
- 3e) la différence entre le k_{eff} MCNP et le k estimé par IME est comparée avec le coefficient de précision c_k multiplié par dk : si la différence est trop grande, alors le pas d'évolution est refait avec un pas Δt_n réduit en utilisant la formule (3.21) (retour à la 1e) étape) et la simulation continue.

$$\Delta t_n \times \frac{c_k dk}{1,5 |k_{\text{eff}} - k|} \quad (3.21)$$

- 4e) de retour à t_{n-1} , une seconde évolution est réalisée jusqu'à t_n avec une interpolation f_i entre les réactions $\langle \sigma \phi \rangle_{n-1}$ et $\langle \sigma \phi \rangle_n$. La figure 3.11 illustre les différents modes d'interpolation. Cette évolution


 FIGURE 3.11 – Les différents modes d'interpolation f_1 , f_2 et f_3

donne les proportions N'_i à t_n ;

- 5e) un test du χ^2 est réalisé entre les proportions N_i et N'_i en utilisant la formule (3.22).

$$\chi_n^2 := \sqrt{\frac{\sum_{\text{cellules}} \sum_i w_i (N'_i - N_i)^2}{(\sum_i N_i)^2}} / c_\chi \quad (3.22)$$

Les poids w_i valent 1 par défaut et sont classiquement mis à 0 pour les isotopes présents dans les alimentations. Le coefficient `precision_abs_MCNP` est renseigné dans les paramètres initiaux du code REM ainsi que les valeurs de χ_{\min}^2 et χ_{\max}^2 :

- (a) si $\chi_n^2 > \chi_{\max}^2$, alors un nouveau calcul MCNP' $_n$ est réalisé pour remettre à jour les taux de réaction et réaliser une troisième évolution entre t_{n-1} et t_n pour obtenir les proportions N_i'' . Ensuite, un nouveau test du χ^2 est réalisé pour comparer les N_i' avec les N_i'' :
- si le test n'est toujours pas satisfaisant, alors la longueur du pas est réduite (3.23) et le pas d'évolution est recommencé (retour à la 1^e étape) :

$$\Delta t_n = \Delta t_n / \sqrt{2} \quad (3.23)$$

- sinon, le prochain pas est lancé en conservant la même longueur (3.24) :

$$\Delta t_{n+1} = \Delta t_n \quad (3.24)$$

- (b) Si $\chi_n^2 < \chi_{\min}^2$ et si la longueur du pas précédent n'a pas été réduite (contrairement aux étapes 3^e et 5^e (a)), alors la longueur du pas suivant est augmentée (3.25) :

$$\Delta t_{n+1} = \Delta t_n \times \sqrt{2} \quad (3.25)$$

- (c) Sinon, le prochain pas conserve la même longueur (3.24).

Les sections suivantes précisent le comportement algorithmique durant les évolutions.

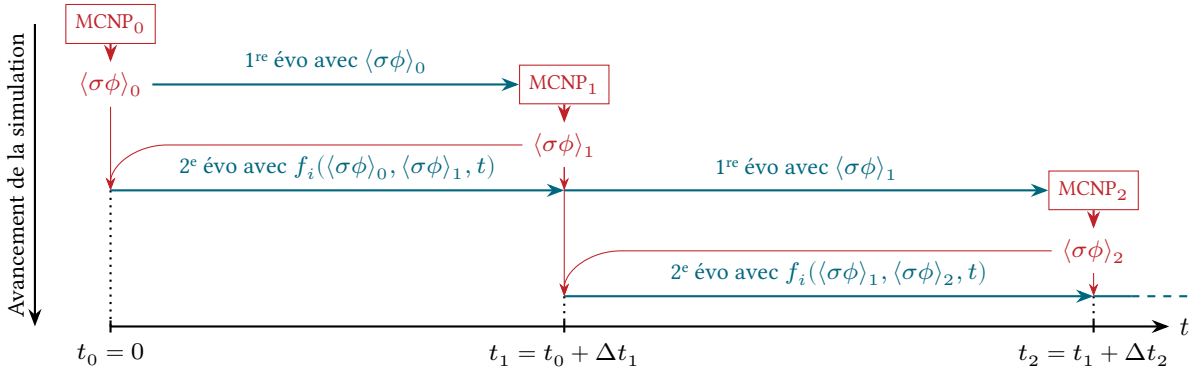


FIGURE 3.12 – Illustration de l'organisation des pas transport et évolution dans le code REM [144]

3.3.2.4 Le pas ERE : l'ajustement des alimentations

Les alimentations présentes dans l'équation de Bateman dépendent du temps. Les ajustements de ces alimentations sont faits lors des pas ERE. Chaque alimentation k possède une liste d'isotopes avec leur proportion, le débit S_k étant distribué proportionnellement à chaque isotope de l'alimentation. Chaque alimentation est associée à une contrainte C_k qu'elle est vouée à contrôler afin d'atteindre une valeur cible C_k^{cible} . Les contraintes historiques implémentées dans le code REM avant la présente thèse sont :

- la réactivité k_{eff} calculée avec la formule (3.26) :

$$k_{\text{eff}}(t) = \frac{\sum_i \langle \bar{\nu}_i \sigma_{f,i} \phi \rangle(t) N_i(t)}{\sum_i \langle \sigma_{a,i} \phi \rangle(t) N_i(t) + \text{fuites}(t)} \quad (3.26)$$

Ce k_{eff} est une estimation faite par le module IME et est différent de celui fourni par le code MCNP. Le calcul de σ_a est explicité dans l'annexe C - 2.3 ;

- la proportion d'un élément spécifique f_Z dans le sel calculée avec la formule (3.27) :

$$f_Z = \frac{N_Z}{N_{\text{tot}} - N_X} \text{ avec } N_X = N_F + N_{\text{Cl}} + N_{\text{Br}} + N_I \quad (3.27)$$

- la proportion de noyaux lourds (NL), *i. e.* d'actinides f_{An} dans le sel;
- la proportion des transuraniens f_{TRU} dans le sel.

Les noyaux lourds sont définis par les éléments plus lourds que l'actinium inclus. À chaque pas de temps Δt , la variation de la contrainte C_k peut s'exprimer selon la formule (3.28) [82].

$$\Delta C_k(t) = \frac{\partial C_k}{\partial t} \Delta t + \frac{\partial C_k}{\partial S_k} \Delta S_k(t) \quad (3.28)$$

Ainsi, à chaque pas ERE, la variation de l'alimentation k est calculée pour rapprocher la contrainte de sa valeur cible, cf. formule (3.29) :

$$\Delta S_k(t) = \frac{\partial S_k}{\partial C_k} \left(C_k^{\text{cible}} - C_k(t) - \frac{\partial C_k}{\partial t} \Delta t \right) \quad (3.29)$$

Cependant, cette méthode ne prend pas en compte le fait que toutes les alimentations peuvent avoir un impact sur une contrainte. Une nouvelle méthode de calcul des alimentations a été implémentée au cours de ces travaux de thèse. La section 4.2.2.2 explicite cette nouvelle méthode de calcul et présente les nouvelles contraintes ajoutées au code ERE par la même occasion.

3.3.2.5 Le pas IME : l'intégration des équations de Bateman

Au début d'un pas IME, le code va commencer par récupérer la valeur des taux de réaction à l'instant t étant donné la possibilité de se retrouver au milieu de la seconde évolution d'un pas REM et donc de l'utilisation d'une interpolation entre deux jeux de données. Il va ensuite calculer les grandeurs nécessaires aux pas ERE :

- la réactivité avec la formule (3.26). Le terme de fuites est considéré comme étant nul à chaque pas de temps (cf. section 4.3.2.3);
- les fractions de noyaux lourds ou de transuraniens si ceux-ci sont déclarés dans la liste des contrôles;
- les autres contrôles explicités dans la section 4.2.2.1 et qui sont tous des fonctions dépendant des N_i .

Le code va ensuite calculer une grandeur importante appelée « coef_flux » et qui est à interpréter comme un nombre de neutrons sources par seconde. Son calcul est explicité dans la formule (3.30), provenant de (3.16), et suppose la puissance thermique P_{th} du réacteur constante dans les données d'entrée :

$$c_{\text{flux}}(t) = \frac{P_{\text{th}}}{\sum_i \langle \sigma_{f,i} \phi \rangle(t) \varepsilon_i N_i(t)} \quad (3.30)$$

Il est à noter qu'il est possible de retrouver la valeur du flux neutronique en multipliant les valeurs du *tally* f4 de MCNP (section 3.1.2.4) avec ce coefficient. Ce coefficient permet enfin de calculer la « constante de décroissance effective » de chaque isotope, représentant les disparitions du noyau à chaque instant, avec les formules (3.31) :

$$\begin{cases} \lambda_{i,\text{eff}}(t) = \sum_{j \neq i} c_{\text{flux}}(t) \langle \sigma_{i \rightarrow j} \phi \rangle(t) + \sum_{j \neq i} \lambda_{i \rightarrow j} + \sum_m \lambda_i^{0 \rightarrow m} \\ \lambda_{i,\text{eff}}^m(t) = \sum_{j \neq i} \lambda_{i \rightarrow j} + \sum_{n \neq m} \lambda_i^{m \rightarrow n} \end{cases} \quad (3.31)$$

Il est possible de retrouver les constantes de pseudodécroissance dans ces formules ainsi que l'absence de réactions neutroniques dans le calcul du lambda effectif au sein des modes $m \neq 0$ (hors flux de neutrons). Enfin, il est à noter l'existence d'un $\lambda_{\text{eff}}^{\text{max}}$ défini dans les données d'entrée.

Le pas IME — de longueur h — est réalisé en intégrant dans un premier temps les équations de Bateman (3.32) sur l'ensemble du pas avec la méthode de résolution RK4. Quand le lambda effectif d'un isotope est plus grand que le $\lambda_{\text{eff}}^{\text{max}}$, les coefficients k_i associés à cet isotope sont mis à 0 (cf. interlude 3.2) témoignant ainsi d'une non-évolution de cet isotope.

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dN_i}{dt} = \sum_{j \neq i} (c_{\text{flux}}(t) \langle \sigma_{j \rightarrow i} \phi \rangle (t) + \lambda_{j \rightarrow i}) N_j(t) - \lambda_{i, \text{eff}}(t) N_i(t) + S_i(t) \\ \frac{dN_i^m}{dt} = \sum_{j \neq i} \lambda_{j \rightarrow i} N_j^m(t) + \sum_{n \neq m} \lambda_i^{n \rightarrow m} N_i^n(t) - \lambda_{i, \text{eff}}^m(t) N_i^m(t) \end{array} \right. \quad (3.32)$$

Une fois ce pas réalisé, le code IME revient en arrière et réalise deux pas RK4 successifs d'une longueur $h/2$ chacun. S'en suit un test du χ^2 entre les deux valeurs du vecteur \vec{N} calculé avec un et avec deux pas RK4. Tout comme le χ^2 présenté dans la formule (3.22), un poids nul est associé aux isotopes dont $\lambda_{i, \text{eff}}(t) > \lambda_{\text{eff}}^{\text{max}}$. Si le test n'est pas concluant, le χ^2 étant plus grand qu'un χ_{max}^2 précédemment défini, alors la longueur h du pas est divisée par deux et l'intégration recommence. Cette opération est effectuée jusqu'à ce que le test du χ^2 soit satisfaisant ou que la longueur h soit devenue plus petite qu'une longueur h_{min} précédemment définie, et ce jusqu'à atteindre la longueur du pas IME initial.

Une trop grande variation de la puissance calculée (dénominateur de la formule (3.30)) par rapport à la puissance thermique fixée dans les données d'entrée peut également entraîner une réduction du pas h .

⊕ Interlude 3.2 : Le pas RK4

Soit f la fonction calculant le produit matriciel de l'équation (3.32) à l'instant t et définit par la formule (3.33).

$$f : \left\{ \begin{array}{l} \mathcal{M}_{n,1} \times \mathbb{R} \longrightarrow \mathcal{M}_{n,1} \\ (\vec{N}, t) \longmapsto A(t) \vec{N}(t) + \vec{D}(t) \end{array} \right. \quad (3.33)$$

Le principe de la résolution de l'équation (3.34) entre les temps t et $t + h$ revient dans un premier temps à calculer les quatre vecteurs \vec{k}_i avec les formules (3.35).

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = f(\vec{N}, t) \quad (3.34)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{k}_1 = f(\vec{N}, t) \\ \vec{k}_2 = f\left(\vec{N} + \frac{h}{2} \vec{k}_1, t + \frac{h}{2}\right) \\ \vec{k}_3 = f\left(\vec{N} + \frac{h}{2} \vec{k}_2, t + \frac{h}{2}\right) \\ \vec{k}_4 = f(\vec{N} + h \vec{k}_3, t + h) \end{array} \right. \quad (3.35)$$

Une fois les vecteurs \vec{k}_i calculés, la valeur de $\vec{N}(t + h)$ est calculée avec la formule (3.36).

$$\vec{N}(t + h) = \vec{N}(t) + \frac{h}{6} (\vec{k}_1 + 2\vec{k}_2 + 2\vec{k}_3 + \vec{k}_4) \quad (3.36)$$

3.3.3 Autres codes d'évolution adaptés aux RSF

Depuis la création du code REM, plusieurs codes de calculs neutroniques en évolution adaptés aux RSF ont émergé de par le monde, dont ceux listés ci-dessous pour les différents acteurs français du nucléaire. Tous ces codes, contrairement à REM, utilisent la modélisation par *batch* des alimentations et traitements chimiques, mais modélisent en continu l'extraction des PF insolubles.

3.3.3.1 MOSARELA (CEA)

Le code MOSARELA (*MOLten Salt Reactor Life-cycle Assessment*) est développé au sein du CEA depuis 2020 [145]. Ce code résout l'équation du transport avec le code Serpent2.2 et résout les équations de Bateman avec un module développé spécifiquement pour ce code et utilisant l'algorithme CRAM48. À la fin de chaque pas d'évolution, une fraction du volume de sel combustible est extraite et un volume égal de sel neuf, dont la composition est ajustée afin de garantir une réactivité suffisante pour le prochain pas, est alimenté. Ce code est celui utilisé par le CEA pour les simulations « de référence » autour desquelles s'articule le projet ISAC.

3.3.3.2 SMURE/CARAPUCE (CNRS/Orano)

Le code SMURE est disponible avec un accès libre aux sources, ce qui permet, par conception du code, de créer des schémas de calcul particuliers. C'est ainsi que dans le cadre de mon stage réalisé à Orano DRD courant 2022, un modèle simple d'évolution de réacteurs à sels fondus convertisseurs a été développé avec le code SMURE [105]. Ce modèle, baptisé CARAPUCE (*Concept of an Advanced Reactor for Actinides and Plutonium Conversion and Evolution*), utilise le code Serpent2 pour le calcul du transport et l'algorithme CRAM pour la partie évolution. À la fin de chaque pas d'évolution, une fraction du volume de sel combustible est extraite et les éléments d'intérêt (les actinides) sont réinjectés immédiatement. Ensuite, la masse m_{alim} d'actinides à alimenter est calculée par interpolation linéaire en comparant, d'une part, l'écart entre le k_{eff} cible ($k_{\text{cible}}^{\text{cor}}$) et le k_{eff} calculé au pas précédent et, d'autre part, l'écart entre le k_{∞} calculé avec et sans l'ajout d'une masse test m_{test} . Ce calcul se fait en prenant l'hypothèse que les fuites de neutrons sont négligeables et donc que $k_{\text{eff}} \simeq k_{\infty}$. La formule (3.37) explicite ce calcul.

$$m_{\text{alim}}(t_{n+1}) = m_{\text{test}} \times \frac{k_{\text{cible}}^{\text{cor}}(t_n) - k_{\text{eff}}(t_n)}{k_{\infty}(t_{n+1}, m = m_{\text{test}}) - k_{\infty}(t_{n+1}, m = 0)} \quad (3.37)$$

Le k_{eff} cible est une version corrigée et prédite avec la moyenne glissante des N derniers écarts entre la cible et le « k_{eff} effectif »⁶ tel que le décrit la formule (3.38).

$$k_{\text{cible}}^{\text{cor}}(t_n) = k_{\text{cible}} + \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (k_{\text{cible}}^{\text{cor}}(t_{n-i}) - k_{\text{eff}}(t_{n-i})) \quad (3.38)$$

3.3.3.3 PYMS (EDF)

Le code PYMS (*PYthon Molten salt studies with SERPENT2*) a été développé dans le cadre d'une thèse EDF au début des années 2000 [87, 146]. Ce code a une approche très semblable à celle utilisée dans le code MOSARELA : le transport est calculé à l'aide du code Serpent2, mais l'évolution est résolue avec le module d'évolution intégré à Serpent utilisant l'algorithme CRAM16. Tout comme les autres codes par *batch*, le k_{eff} est ajusté à la fin de chaque cycle pour être légèrement surcritique afin d'assurer une réactivité suffisante jusqu'au cycle suivant. Dans le cas de PYMS, cet ajustement se fait par dichotomie de la fraction d' AnCl_3 dans le sel d'alimentation.

6. « k_{eff}^2 je pense » — Anna Maître

3.3.3.4 CEREIS (CNRS – Subatech/LPSC)

Le code CEREIS (*Contrôleur en Évolution de la Réactivité par Extraction et Injection de Sel*) est développé conjointement par le laboratoire Subatech et au LPSC et en particulier dans le cadre de la thèse CNRS de Jad Halwani au sein du projet ISAC. L'approche est semblable aux deux codes précédents : le transport et l'évolution sont réalisées avec le code Serpent2, le tout contrôlé avec une interface développée en Python [147]. Ce code ajuste les alimentations à la fin de chaque cycle d'évolution pour atteindre la criticité du système avant le calcul de transport suivant réalisé avec le code Serpent2, mais son approche modulaire permet d'envisager d'autres contrôles à l'avenir [148]. Les applications principales de ce code sont les calculs d'inventaire et de puissance résiduelle d'un réacteur [94] et un couplage est envisagé avec les codes de propagation d'incertitudes dues aux données nucléaires par tirage aléatoire sur les sections efficaces et les rendements de fissions avec respectivement Coconuŝt [149] et Cocodrilo [150].

💡 À retenir (3.3)

Les RSF demandent certaines spécificités pour les calculs neutroniques en évolution, comme par exemple l'intégration d'entrées et de sorties de matière durant les évolutions et nécessitant l'adaptation des codes d'évolution. Le code d'évolution de RSF utilisé dans le cadre de cette thèse est le code REM, code de référence pour ce type de réacteurs en France et seul code permettant une simulation continue pour les alimentations. D'autres codes d'évolution adaptés aux RSF existent et sont spécialisés pour les alimentations simulées par *batch*.

3.4 Les codes de scénario de déploiement nucléaire

3.4.1 Définition pragmatique d'un scénario

Le mot « scénario » provient du mot italien *scenario* signifiant « canevas d'une pièce de théâtre » [151]. Il s'agit donc d'une esquisse ou d'une ébauche de ce que pourrait être le futur d'un parc de réacteurs à partir d'un jeu de paramètres initiaux et éventuellement d'objectifs préétablis. Ne s'agissant en aucun cas d'une prédiction de l'avenir, un scénario s'interprète plutôt comme une tendance permettant d'alimenter la compréhension et la réflexion sur les réacteurs et les cycles du combustible présents et futurs [43].

3.4.2 Le code ISF

Le code ISF (*Innovative Scenarios for the Future*), anciennement dénommé SDF (*Scénario Du Futur*), est un code développé au CNRS/LPSC au sein de l'environnement DALI depuis le début des années 2000 [152]. Il a été conçu, en appui aux études système de réacteurs à sels fondus du LPSC, pour réaliser des études de scénarios statiques de déploiements de réacteurs intégrant des RSF [36]. La simplicité du code lui permet une très grande rapidité d'exécution, de l'ordre de la seconde pour faire évoluer un parc entier sur plusieurs siècles. Mais cette simplicité se traduit par une gestion statique des objets simulés par le code. Ces objets sont de différents types :

- le type Matériau possédant un vecteur isotopique donné ;
- le type Évomat (*Évolution d'un matériau*) traduisant l'évolution temporelle de la quantité d'un matériau ;
- les types Stock et Réserve de matériaux ;
- le type Réacteur possédant diverses caractéristiques comme sa puissance, son année de mise en service, sa durée de vie, ses évomats d'entrée et de sortie ;
- le type Unité d'Enrichissement ou de Retraitement (*UER*) fonctionnant en pratique comme un réacteur de puissance nulle et permettant de transformer des évomats ;

- le type Parc, régissant l'ensemble.

Tous ces objets interagissent entre eux durant l'exécution du code dont l'une des sorties est un graphe orienté les représentant. Ce graphe est généré dans le langage DOT permettant de le visualiser grâce au logiciel Graphviz. Dans la suite de ce manuscrit, ces graphes seront reproduits avec le langage TikZ suivant la convention présentée dans la figure 3.13 pour les différents objets simulés.

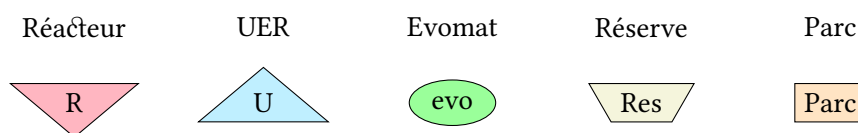


FIGURE 3.13 – Pictogrammes et conventions colorées des éléments du code ISF [153]

Le code s'initialise dans un premier temps par la définition de tous les objets nécessaires à son lancement. Les réacteurs, une fois définis, sont listés par ordre de priorité. Cette priorité indique l'ordre dans lequel le code ISF va essayer de lancer chaque filière au cours du scénario. Une fois les objets listés ci-dessus définis, il est nécessaire d'indiquer au code une durée durant laquelle il va réaliser le scénario ainsi qu'une demande énergétique au cours du temps. Chaque réacteur possède une puissance électrique installée et la demande va être pour chaque année une puissance totale du parc simulé. L'objectif du code est ainsi de répondre à la demande en tentant de démarrer le nombre de réacteurs nécessaires année après année. Le principe de fonctionnement est synthétisé par la figure 3.14 et peut se décrire ainsi :

- au début de chaque pas, si la demande n'est pas déjà satisfaite, le code va récupérer le premier réacteur dans sa liste de filières et va vérifier s'il a le droit de démarrer ce réacteur. Différentes raisons peuvent amener le code à ne pas avoir ce droit :
 - la filière n'existe pas à la date courante. Un EPR disponible à partir de 2024 ne peut pas exister en 1970 ;
 - le code a déjà démarré trop de réacteurs venant de cette filière. Il est possible d'imposer un nombre maximal de réacteurs provenant d'une filière ainsi qu'un nombre maximal de démarrages d'un type de réacteur par pas de temps ;

Si le code n'a pas le droit de démarrer le réacteur, il retente avec la filière suivante jusqu'à épuisement de la liste. Si la liste est épuisée, la demande n'est pas satisfaite pour le pas courant et le code passe au pas suivant ;

- si le code a le droit de démarrer le réacteur, alors il va calculer la quantité de combustibles nécessaires au fonctionnement du réacteur durant toute sa durée de vie. Si les réserves en combustibles sont suffisantes, alors le réacteur est démarré ;
- si les réserves en combustibles ne sont pas suffisantes, le code va démarrer des UER affiliées aux combustibles concernés en suivant la même logique que les réacteurs : il va calculer la quantité de ressources nécessaires au fonctionnement des UER durant toute leur durée de vie. Si malgré tout, il ne trouve pas assez de ressources pour démarrer le réacteur, il passe à la filière suivante. Si les ressources pour fabriquer les combustibles sont suffisantes, alors le réacteur est démarré ;
- une fois le réacteur démarré, le code va comparer la puissance effectivement installée avec la demande. Si la demande est satisfaite, le code passe au pas suivant. Sinon, le code recommence le processus en tentant de démarrer un nouveau réacteur.

L'intégration des réacteurs à sels fondus est très simple à mettre en œuvre dans ISF avec la possibilité d'utiliser les sorties du code REM moyennant quelques manipulations de fichiers. Cette simplicité d'utilisation amène cependant des limites, la principale étant le caractère statique du code. Certains paramètres, comme l'enrichissement de l'UOX ou la teneur en plutonium dans le MOX, ne sont pas ajustables en temps réel par le code [27]. De plus, l'objectif pilotant l'algorithme est uniquement une puissance électrique installée. Il n'est pas possible de donner au code un objectif de stabilisation de l'inventaire d'une matière, par exemple, qui paraît être un objectif naturel dans l'étude de l'impact d'un réacteur incinérateur au sein d'un parc de REP [118].

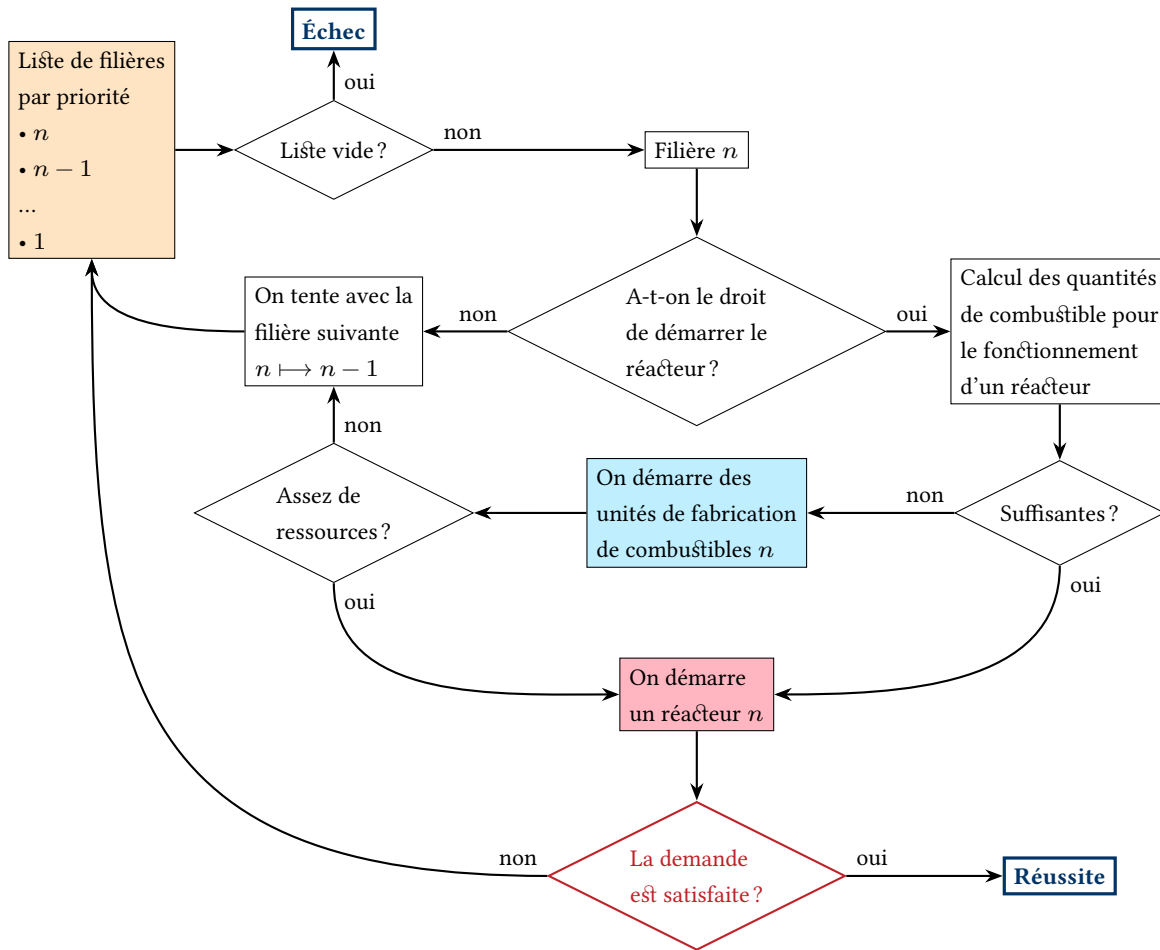


FIGURE 3.14 – Principe de fonctionnement de l’algorithme ISF à chaque pas [118, 153]

Cependant, ISF se distingue des autres codes de scénarios par sa primauté en ce qui concerne l’intégration de réacteurs à sels fondus dans des parcs et des études inhérentes [1]. Ce code sera majoritairement utilisé dans le chapitre 6 de ce manuscrit, centré sur les scénarios de déploiement.

3.4.3 Autres codes de scénarios existants

Au sein du projet ISAC a été réalisé un *benchmark* entre les codes de scénarios des différents partenaires du projet dans l’objectif d’y intégrer des modèles simplifiés de réacteurs à sels fondus [114, 115, 117]. Ces codes, en plus d’ISF, sont les suivants :

- COSI (COde de SIMulation) développé par le CEA depuis les années 1980 et qui constitue le code de référence en France [154];
- TIRELIRE-STRATEGIE développé par EDF [155];
- COSAC développé par Framatome [156].

Tous ces codes, contrairement à ISF, peuvent être dynamiques. L’intégration des réacteurs à sels fondus s’est faite suivant plusieurs étapes, commençant par une intégration statique proche de celle d’ISF à une intégration plus poussée utilisant des métamodèles (voir thèse EDF de Paul-Édouard Dufour [157]). Le chapitre 6 explicite le scénario de référence utilisé dans le projet ISAC pour réaliser le *benchmark*.

À retenir (3.4)

Les codes de scénarios permettent de simuler une trajectoire de déploiement de filières de réacteurs nucléaires. Le code de scénario utilisé dans le cadre de cette thèse est ISF.

3.5 Autres codes et outils utilisés dans la thèse

3.5.1 Présentation rapide du matériel informatique utilisé

Les simulations numériques réalisées dans le cadre de cette thèse ont été lancées sur des serveurs haute performance tournant sous Fedora. L'équipe encadrante a accès à huit machines, numérotées de 01 à 08, dont les caractéristiques techniques sont présentées dans le tableau 3.1. Chaque machine possède quatre *sockets* de processeurs Intel Xeon Gold comprenant entre 10 et 24 cœurs physiques. Ce nombre de cœurs est doublé en ce qui concerne les cœurs logiques grâce à l'activation de l'*hyper-threading*.

Machine	01	02	03	04	05	06	07	08
Version de Fedora	41	35	35	35	35	35	35	35
Version du noyau Linux	6.12.11	5.15.7	5.16.8	5.16.5	5.16.5	5.16.8	5.18.11	5.18.11
Version Intel Xeon Gold	6252	6138	6238	6238	6252	6252	6252	6252
Fréquence [GHz]	2,10	2	2,10	2,10	2,10	2,10	2,10	2,10
Cœurs physiques	4×10	4×20	4×22	4×22	4×24	4×24	4×24	4×24
Cœurs logiques	80	160	176	176	192	192	192	192
RAM [Go]	188	251	376	503	377	377	755	755

TABLEAU 3.1 – Caractéristiques techniques des machines de calcul utilisées pour les simulations (en juin 2025)

Sur ces huit machines sont montés plusieurs disques de tailles allant de 2,4 à 127 To dont certains ont une sauvegarde journalisée au centre de calcul de l'IN2P3. Toutes ces infrastructures, offrant un environnement de calcul particulièrement adapté aux simulations intensives en ressources telles que les calculs Monte-Carlo, sont accessibles au travers de commandes `ssh` lancées depuis un ordinateur portable.

3.5.2 L'algorithme Sherlock

L'algorithme Sherlock est un module de l'environnement de développement Maya écrit en Python par Axel Laureau au sein de l'équipe MSFR au LPSC. Il s'agit d'un algorithme de recherche de criticité modulable : l'objectif est d'atteindre un k_{eff} cible en jouant sur un paramètre p et en lançant plusieurs calculs MCNP, Serpent ou OpenMC en parallèle. La figure 3.15 illustre un exemple dans lequel le k_{eff} cible est de 1 et le paramètre p est la fraction de PuCl_3 dans un sel $\text{NaCl} - \text{MgCl}_2 - \text{PuCl}_3$ (cf. section 2.1.2.2).

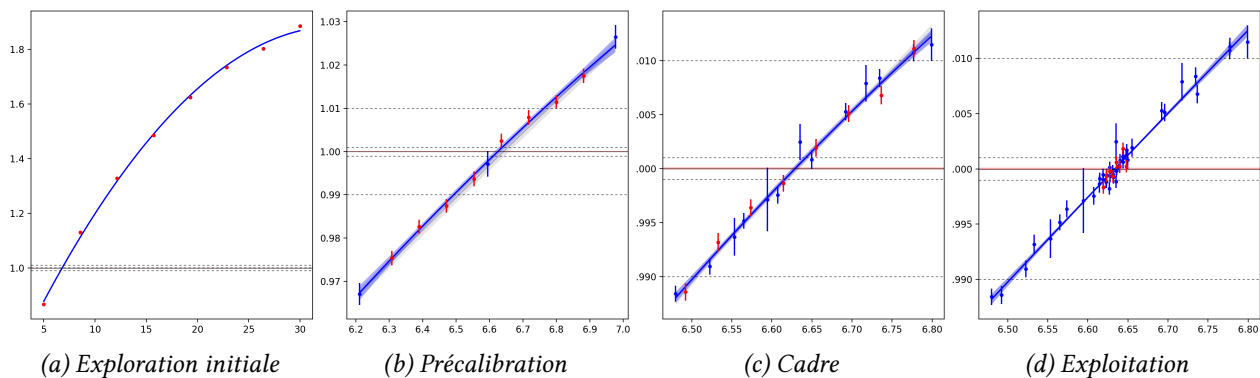


FIGURE 3.15 – Fichiers de sortie Sherlock illustrant la recherche

En plus du k_{eff} cible et de la fenêtre initiale des valeurs que peut prendre le paramètre p , les entrées de l'algorithme demandent un cadre de référence (dans l'exemple, 1000 pcm), une précision sur l'objectif (ici, 10 pcm) ainsi qu'un nombre de neutrons sources (10000). L'algorithme fonctionne ainsi :

- 1^e) Phase de précalibration : le code va balayer les valeurs de p en lançant des calculs MC en parallèle – typiquement, huit calculs sur douze *threads* chacun – avec 10 % de neutrons sources en commençant par la fenêtre initiale (figure 3.15a) et en réduisant la fenêtre jusqu'à trouver deux points entrant dans le cadre et définissant ici la zone ± 1000 pcm (figure 3.15b). Cette phase s'est déroulée dans l'exemple en 3 itérations durant une minute sur la machine 07 (voir tableau 3.1. L'interpolation entre les différents points est d'ordre deux et les figures montrent successivement les interpolations précédentes (points bleus et courbes grises).
- 2^e) Phase de cadre : le code va balayer les valeurs de p entrant dans le cadre avec 50 % des neutrons sources et en réduisant la fenêtre jusqu'à atteindre quatre fois la précision, soit ici 40 pcm (figure 3.15c). Cette étape a pris 2 minutes et 40 secondes sur la 07 dans cet exemple.
- 3^e) Phase d'exploitation : le code va balayer les valeurs de p entrant dans 10 % du cadre (± 100 pcm) avec 100 % des neutrons sources jusqu'à atteindre la précision voulue autour du k_{eff} cible (figure 3.15d). Cette étape a pris 10 minutes sur la 07 dans cet exemple.
- 4^e) Phase optionnelle de *polish* : une fois la valeur de p trouvée pour que le k_{eff} soit proche de la cible dans la précision voulue, il est possible de lancer un dernier calcul MC avec un gros nombre de neutrons pour confirmer la recherche.

Cet algorithme sera utilisé tout au cours de cette thèse pour calculer les compositions critiques avant le lancement des calculs d'évolution. Il est à noter que, lorsque le paramètre p recouvre une zone de discontinuité (comme il est possible d'en trouver sur un eutectique de diagramme ternaire), le code peut rencontrer quelques problèmes pour converger voire converger vers une solution inexacte, les graphes présentés dans la figure 3.15 permettant une vérification *a posteriori* du bon déroulement du calcul.

3.5.3 Le constructeur de géométries REM

3.5.3.1 Imbrication des traducteurs intercode

Le code ERE, par l'intermédiaire du module CGM, traduit les données géométriques (cellules : volumes les délimitant et matériaux les composant) décrites dans les fichiers de configuration en descriptions lisibles par le code MCNP (surfaces) avant son lancement. Cette sous-étape se retrouve dans les étapes de transport dans la figure 3.8. Mais la description détaillée des formes et des cellules peut s'avérer être longue et une simple modification de géométrie pour des études de sensibilités (voir section 5.1.3.1) peut demander des calculs longs à faire à la main pour repositionner les différentes cellules. C'est en partant de ce constat que des constructeurs de géométrie ont été développés au sein de l'équipe MSFR au début des années 2020 dans le langage Java. Chaque constructeur est associé à un modèle de réacteur qu'il permet de décrire avec une liste réduite de mots-clefs prédéfinis et pertinents. La figure 3.16 montre l'imbrication entre les différents codes permettant la transposition entre la liste de mots-clefs lus par le Constructeur Java et la description détaillée donnée au code MCNP en bout de chaîne.

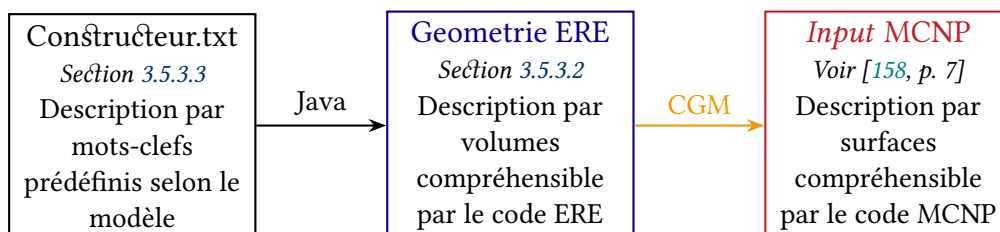


FIGURE 3.16 – Traduction des informations pour construire la géométrie

La section 3.5.3.2 explicite la construction de la géométrie au travers du code ERE et la section 3.5.3.3 montre la traduction effective en mots-clefs.

3.5.3.2 La géométrie ERE

Le code ERE distingue en pratique deux objets appelés FORME et REACTEUR [82]. Les formes sont des descriptions de volumes qu'il sera nécessaire de positionner dans l'espace. Il y a cinq types de formes disponibles :

- $Sphere(r, R)$, une sphère creuse avec un rayon intérieur r pouvant être nul et un rayon extérieur R ;
- $Cylindre(r, R, h, \vartheta)$, un cylindre creux fini avec un rayon intérieur r pouvant être nul, un rayon extérieur R et une hauteur h . L'angle ϑ est un angle de révolution autour de l'axe du cylindre. Sa valeur par défaut est de 2π ;
- $PPR(L, \ell, h)$, un parallélépipède rectangle (PPR) de dimensions L , ℓ et h ;
- $Hexagone(a, h)$, un cylindre à base hexagonale de côté a et de hauteur h ;
- $Tore(R, a, b)$, un tore de section ellipsoïdale avec R le rayon toroïdal et a et b les demi-grand axe et le demi-petit axe poloïdaux.

La figure 3.17 montre les différentes formes disponibles dans le code ERE : la sphère creuse⁷, le cylindre creux avec $\vartheta = 2\pi$ et $\vartheta = \frac{5\pi}{6}$, le PPR, l'hexagone et le tore.

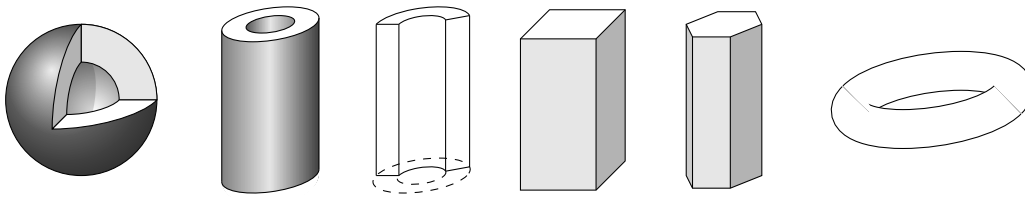


FIGURE 3.17 – Les différentes formes gérées par le code ERE

Une fois les formes géométriques définies, il est temps de les placer et de les remplir avec des matériaux. L'objet REACTEUR possède plusieurs sous-objets dont en particulier CELLULE, GROUPE et COMPOSITE. Une cellule est décrite par une forme associée à sa position (x, y, z) et son orientation sphérique $(\theta, \varphi(t))$ dans l'espace. Il est à noter que l'angle $\varphi(t)$ peut dépendre du temps avec le renseignement possible des valeurs de $\dot{\varphi}$, $\ddot{\varphi}$ et $\ddot{\varphi}$. La cellule est ensuite remplie avec un matériau ayant un composite, lui-même regroupant une composition, une température et une densité données. Plusieurs cellules peuvent être rassemblées dans un groupe indiquant que le matériau commun aux cellules évoluera de manière homogène tout au long du calcul : il sera classique dans les réacteurs présentés dans cette thèse de grouper les cellules Cœur, Plenums et HX (*Heat exchanger, échangeur de chaleur*). Enfin, il est possible de demander à CGM d'ajouter un *tally* sur la cellule pour que le code MCNP construise le spectre neutronique dans cette cellule, voir section 3.1.2.6.

Une cellule peut également être incluse dans une autre, ce qui donnera lieu à la création d'un nouvel univers dans l'*input* MCNP. Une attention particulière est à faire dans ce cas précis : le module CGM transforme les descriptions volumiques des cellules utilisées par ERE en descriptions surfaciques utilisées par le code MCNP. Pour ce faire, il va mutualiser les surfaces en commun que pourraient avoir deux volumes joints. Cependant, pour un volume contenu dans un autre, la surface du premier ne doit pas coïncider avec celle du second, des neutrons voulant traverser les deux surfaces simultanément pouvant être « perdus » dans un calcul MCNP. Un léger écart de quelques micromètres suffit à régler ce problème. Il faut également noter que deux volumes ne doivent pas se recouvrir auquel cas les calculs des volumes peuvent être erronés.

7. La découpe présente ne l'est qu'à titre d'illustration.

Il est à noter qu'une fois toutes les cellules construites, CGM va construire une sphère avec un rayon valant dix fois la plus grande longueur fournie par ERE pour entourer le réacteur. Dans l'input MCNP, les neutrons sont simulés à l'intérieur de cette sphère.

3.5.3.3 Le constructeur Java

Le réacteur ARAMIS présenté dans la suite de ce travail (voir section 5.2) a un cœur cylindrique d'un volume d'1,2 m³ et un facteur d'élanement⁸ de 2. La figure 3.18 montre un exemple simplifié de constructeur traduisant ces caractéristiques en données compréhensible par le code ERE. Dans la suite de cette thèse, les études de sensibilité se feront à travers le volume du cœur et non son rayon ou sa hauteur, ce qui justifie l'utilisation d'un constructeur.

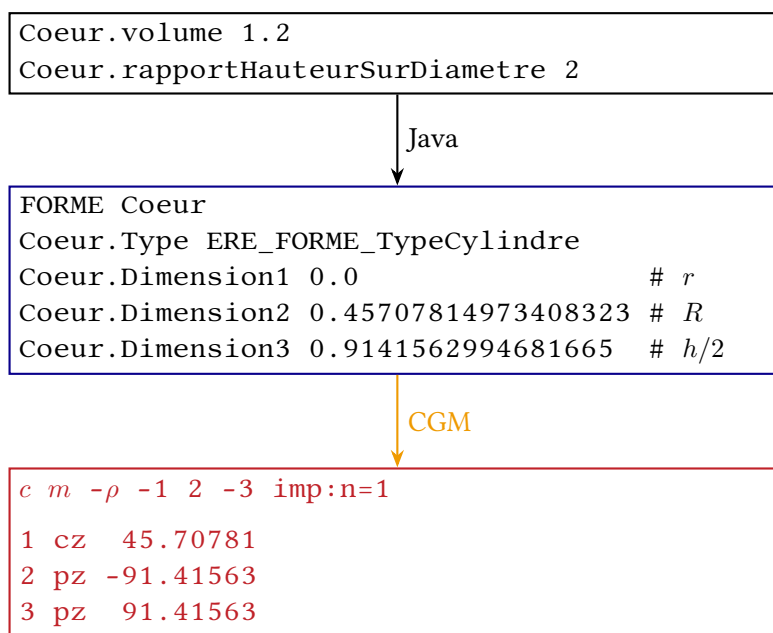


FIGURE 3.18 – Exemple de construction d'un cœur cylindrique (traduction de la figure 3.16)

La section 4.3.2 décrit le constructeur développé pour les travaux présentés dans cette thèse et l'annexe C - 3 montre à titre d'exemple une version plus complète des descriptions présentées dans la figure 3.18 avec le concept RAPTOR présenté dans le chapitre 5.

💡 À retenir (3.5)

D'autres codes sont utilisés dans le cadre de cette thèse : Sherlock, permettant de déterminer le sel initial d'un réacteur suivant des critères de criticité, et le constructeur de géométrie REM, permettant de traduire dans une interface simplifiée les données géométriques des réacteurs étudiés.

8. L'élanement est défini en foresterie comme étant le rapport de la hauteur sur le diamètre d'un arbre.

Conclusion du chapitre

Ce troisième chapitre a présenté les outils numériques classiques utilisés dans ce travail de thèse pour la simulation des réacteurs en général, et à sels fondus en particulier. Parmi ceux-ci, le code MCNP permet de résoudre les équations du transport neutronique afin de calculer les grandeurs nécessaires à la résolution de l'équation de Bateman, cette équation est résolue dans les calculs en évolution avec les codes SMURE et REM. SMURE est utilisé ici pour modéliser les REP, comme détaillé dans le chapitre 6 tandis que REM est spécialisé pour les réacteurs à sels fondus, présentés et utilisés dans les chapitres 5 et 6. La description détaillée du code REM, originale dans la littérature, a permis d'avoir les clefs pour comprendre comment résoudre des instabilités du code REM observées précédemment, menant aux développements réalisés au sein de celui-ci et présentés dans le chapitre 4 ainsi que les motivations ayant conduit à ces développements. Enfin, la présentation du code ISF — code de scénario utilisé dans le chapitre 6 — et des outils présents au début de la thèse et dont certaines adaptations sont détaillées dans le chapitre 4, vient conclure ce chapitre.

4

Adaptation des outils pour l'étude de RSF incinérateurs

Sommaire

<i>Introduction du chapitre</i>	103
4.1 Les RSF incinérateurs	103
4.1.1 L'incinération des actinides mineurs	103
4.1.2 Définition de critères de performance d'incinération	105
4.1.3 Objectifs d'un RSF incinérateur	111
4.2 Contribution à l'adaptation des outils de modélisation de RSF incinérateurs	113
4.2.1 Problématique	113
4.2.2 De nouveaux développements dans les codes ERE et REM	113
4.2.3 Application et premiers résultats sur le MSFR de référence	119
4.3 Outils d'analyse poussée	123
4.3.1 Relecture et interface graphique automatisées	124
4.3.2 Construction automatisée de la géométrie	126
4.3.3 Méthodologie de modélisation d'un réacteur	130
<i>Conclusion du chapitre</i>	131

Figures

4.1 chaîne d'incinération simplifiée du ^{239}Pu	104
4.2 chaîne de Markov absorbante des captures pour les principaux isotopes considérés	104
4.3 $N_{n,i}$ de quelques actinides d'intérêt pour différentes profondeurs de \mathcal{C}_i	108
4.4 Visualisations MCNP de la géométrie du MSFR-CI avec le vase d'expansion	114
4.5 Détail des différentes étapes pendant un pas MCNP sur un débit de chlore	117
4.6 Visualisation de l'évolution de la matrice jacobienne	117
4.7 Alimentation instantanée et cumulée en ^{233}U et réactivité dans le cœur du MSFR	122
4.8 Quelques pages de l'interface REMGui avec le MSFR de référence pour illustration	125
4.9 1/16 ^e du circuit combustible du MSFR optimisé pour la thermohydraulique et utilisé pour les études neutroniques	126
4.10 Conventions « plénum court » à gauche et « plénum long » à droite	127
4.11 Cotes d'une géométrie type RAPTOR (coupe axiale)	128
4.12 Réacteur avec une boule de B_4C autour	129
4.13 Méthodologie de modélisation d'un réacteur	130

Tableaux

4.1	UOX et MOX usés et refroidis 5 ans	103
4.2	$N_{n,i}$ de quelques actinides d'intérêt pour différentes profondeurs de \mathcal{C}_i	108
4.3	Objectifs sur les critères d'incinération pour un régénérateur et deux incinérateurs Pu et AM	112
4.4	Contraintes disponibles dans le code REM	115
4.5	Caractéristiques géométriques du MSFR de référence	119
4.6	Caractéristiques des sels initiaux et paramètres REM de la simulation du MSFR de référence	120
4.7	Schéma d'extraction EVOL pour le cœur (gauche) et la couverture (droite)	121
4.8	Alimentations et contraintes dans le MSFR	121
4.9	Comparaison de grandeurs neutroniques en cœur entre différentes géométries simplifiées du MSFR de référence	127

Introduction du chapitre

Ce chapitre est dédié aux adaptations réalisées dans les outils de modélisation pour l'étude des RSF incinérateurs. Une première partie (4.1) définit précisément ce qu'est un incinérateur, en particulier du point de vue des objectifs et des performances attendues. Pour cela, divers critères – certains classiques dans la littérature et d'autres originaux de ces travaux – sont définis pour évaluer leur atteinte en se servant d'éléments de physique des réacteurs présentés dans le chapitre 1. Une deuxième partie (4.2) présente les développements réalisés au sein du code REM, présenté dans sa version préthèse dans le chapitre 3, ainsi que le contexte dans lequel ils ont été réalisés et des problématiques soulevées par ceux-ci. Une première application de la nouvelle version du code REM au cas connu du MSFR de référence est proposée. Enfin, une troisième partie (4.3) introduit quelques outils d'analyse poussée développés au cours de cette thèse, que cela soit pour le traitement des données ou la construction de la géométrie des réacteurs étudiés. Ces outils permettent de développer une méthodologie de modélisation d'un réacteur, passant d'une esquisse statique répondant à diverses contraintes physicochimiques explicitées dans le chapitre 2 au déploiement d'un parc de réacteurs dans des scénarios d'évolution, dont traite le chapitre 6.

4.1 Les RSF incinérateurs

L'étude d'un RSF incinérateur nécessite de définir plusieurs critères d'évaluation des performances d'incinération. Ces critères sont associés à des objectifs à atteindre.

4.1.1 L'incinération des actinides mineurs

Avant de définir des critères et des objectifs pour mesurer la capacité d'incinération d'un parc de réacteurs, il est nécessaire de savoir ce qui sera effectivement incinéré. Le tableau 4.1 montre le vecteur isotopique des TRU provenant de combustibles UOX et MOX irradiés pendant 50 GW d/t en REP et refroidis pendant 5 ans [105].

Combustible		UOX usé [% _{mol}]			MOX usé [% _{mol}]		
X	^A X	\vec{V}_{TRU}	$\vec{V}_{\text{X/TRU}}$	\vec{V}_X	\vec{V}_{TRU}	$\vec{V}_{\text{X/TRU}}$	\vec{V}_X
Np	²³⁷ Np	5,6990	5,6990	100,0	0,3487	0,3487	100,0
Pu	²³⁸ Pu	2,4410		2,7618	2,9717		3,3003
	²³⁹ Pu	46,250		52,328	36,176		40,176
	²⁴⁰ Pu	21,830	88,385	24,699	27,617	90,044	30,671
	²⁴¹ Pu	10,620		12,015	13,048		14,491
	²⁴² Pu	7,2430		8,1949	10,229		11,360
Am	²⁴¹ Am	3,3270		63,704	5,2195		64,541
	^{242m} Am	0,0215	5,2225	0,4122	0,1047	8,0870	1,2957
	²⁴³ Am	1,8740		35,882	2,7627		34,162
Cm	²⁴³ Cm	0,0045		0,6626	0,0144		0,9538
	²⁴⁴ Cm	0,6275		90,508	1,2918		84,994
	²⁴⁵ Cm	0,0543	0,6933	7,8364	0,1987	1,5199	13,078
	²⁴⁶ Cm	0,0068		0,9922	0,0147		0,9729

TABLEAU 4.1 – UOX et MOX usés et refroidis 5 ans [105]

Pour chaque combustible, le tableau 4.1 se lit comme suit :

- la première colonne est la proportion isotopique de tous les isotopes du vecteur;
- la deuxième colonne est la proportion molaire des éléments du vecteur;
- la troisième colonne est la proportion isotopique au sein de chaque élément.

Le transuranien majoritaire est le plutonium, représentant environ 90 % des isotopes. Il est possible de représenter la chaîne d'incinération simplifiée des isotopes d'intérêt (définie dans la section 1.2.3.5) en faisant l'hypothèse de sauter les petits temps de décroissance. La constante λ_i de décroissance étant grande devant les taux de réactions mis en jeu, cela va réduire la probabilité d'absorption, voir proposition (4.1).

$$\lambda_i \gg \langle \sigma_{a,i} \phi \rangle \Rightarrow \frac{\langle \sigma_{a,i} \phi \rangle}{\lambda_i + \langle \sigma_{a,i} \phi \rangle} \sim 0 \tag{4.1}$$

La figure 4.1 montre le début de la chaîne d'incinération simplifiée du ^{239}Pu avec des valeurs de proportion de fission illustratives bien que représentatives des réacteurs rapides étudiés dans le cadre de cette thèse. Ces valeurs dépendent du spectre du réacteur étudié. Il est à noter qu'une flèche dans ces chaînes représente une absorption et le résultat effectif de celle-ci après d'éventuelles décroissances.

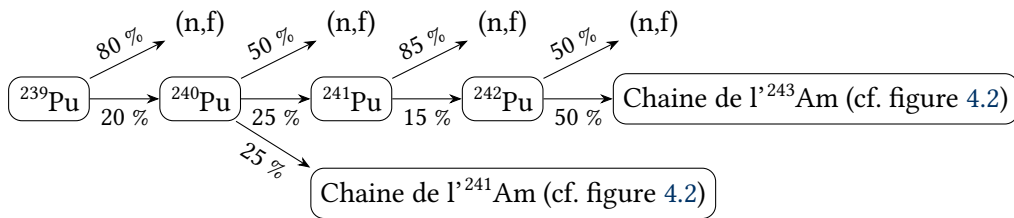


FIGURE 4.1 – chaîne d'incinération simplifiée du ^{239}Pu

Les 10 % de transuraniens restants sont partagés parmi le neptunium, l'américium et le curium – les actinides mineurs – avec une différence notable s'il s'agit d'un combustible UOX ou MOX utilisé : le neptunium étant un produit de la capture de l' ^{235}U , il se retrouve en plus grande proportion dans les combustibles UOX. Il apparait du tableau 4.1 que, le plutonium mis à part, les isotopes majoritaires – donc présentant un intérêt pour l'incinération – sont le ^{237}Np pour les transuraniens provenant d'UOX usés, les ^{241}Am et ^{243}Am et, éventuellement, le ^{244}Cm pour ce qui est du MOX usé. La figure 4.2 montre la chaîne de Markov des captures pour les principaux isotopes considérés en omettant volontairement les états « (n,f) » pour des raisons de visualisation.

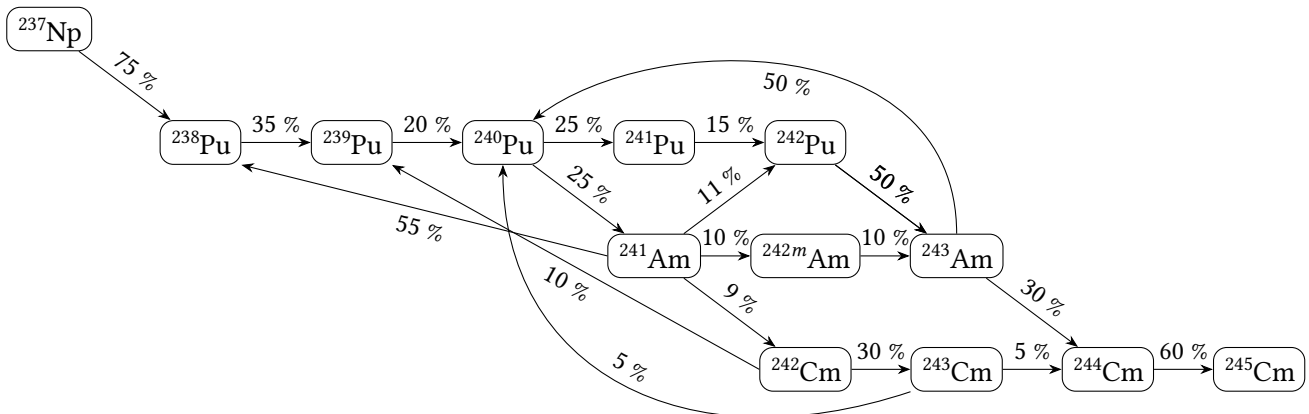


FIGURE 4.2 – chaîne de Markov absorbante des captures pour les principaux isotopes considérés

Le ^{242}Cm ayant une demi-vie de 162,8 jours, soit un λ_i de seulement quelques ordres de grandeur des taux de réaction sur le même isotope, la probabilité de capture aboutissant à une absorption se trouve entre 1 et 5 % dans les concepts étudiés dans les chapitres suivants.

4.1.2 Définition de critères de performance d'incinération

La performance d'un réacteur incinérateur se reflète en mesurant sa capacité à produire des fissions sur les actinides d'intérêt avec lesquels il est alimenté. Soit i un isotope d'intérêt pour l'incinération présent dans une cellule c . Pour une réaction neutronique r donnée (fission, capture), ou pour une alimentation ou une extraction assimilée à une réaction r , le taux de réaction massique $\dot{m}_{r,i}$ peut s'écrire sous la forme présentée dans la formule (4.2) en considérant $\langle\sigma_{r,i}\phi\rangle$ le taux de réaction volumique (cf. section 1.2.2.2), M_i la masse molaire, V_c le volume du sel considéré et \mathcal{N}_A le nombre d'Avogadro.

$$\dot{m}_{r,i}(t) = \frac{M_i V_c}{\mathcal{N}_A} \langle\sigma_{r,i}\phi\rangle(t) \quad (4.2)$$

La formule (4.3) définit alors la masse d'isotopes i ayant réagi selon r depuis le début de vie du réacteur.

$$m_{r,i}(t) = \int_0^t \dot{m}_{r,i}(t') dt' = \frac{M_i V}{\mathcal{N}_A} \int_0^t \langle\sigma_{r,i}\phi\rangle(t') dt' \quad (4.3)$$

Cette masse $m_{r,i}$ ne doit pas être confondue avec la masse présente dans la cellule considérée m_i . Par défaut, cette cellule sera le cœur du réacteur, assimilé dans la suite à tout le circuit combustible. Lorsque c'est nécessaire, la cellule est précisée : $m_i^c = m_i^{\text{cœur}}$ ou $m_i^{\text{couverture}}$. Il est possible de faire un bilan à l'instant t permettant de mesurer la masse m_i , cf. équation (4.4).

$$m_i(t) = \text{création}_i(t) - \text{disparition}_i(t) \quad (4.4)$$

Les créations sont données par la formule (4.5) :

- la masse initiale $m_i(0)$ ou, parfois, m_{init} ;
- la masse alimentée ;
- la masse produite par réaction neutronique ou par décroissance radioactive.

$$\text{création}_i(t) = m_i(0) + m_{\text{alimentée},i}(t) + m_{\text{produite},i}(t) \quad (4.5)$$

Tandis que les disparitions sont données par la formule (4.6) :

- la masse extraite ;
- la masse fissionnée ;
- la masse capturée ;
- la masse disparue par décroissance radioactive.

$$\text{disparition}_i(t) = m_{\text{extraite},i}(t) + m_{\text{fissionnée},i}(t) + m_{\text{capturée},i}(t) + m_{\text{décrue},i}(t) \quad (4.6)$$

Enfin, la notion de **masse mobilisée** est définie : il s'agit de la masse alimentée dans le réacteur – y compris la masse initiale – à laquelle est soustraite la masse extraite. Ou encore, il s'agit de la masse rendue disponible dans le réacteur de par son utilisation, cf. formule (4.7).

$$m_{\text{mobilisée},i}(t) = m_i(0) + m_{\text{alimentée},i}(t) - m_{\text{extraite},i}(t) \quad (4.7)$$

À partir de là, il est possible de construire plusieurs critères mesurant l'efficacité d'incinération d'un réacteur. Les critères n^{os} 1, 3, 5 et 9 ont été développés par Laura Mesthiviers au cours de sa thèse [27], le critère n^o 4 est une adaptation d'un critère développé dans le cadre du projet ISAC [110] et les critères n^{os} 2, 6, 10 et 11 sont originaux :

- 1^e) $\eta_i(t)$, le rendement d'incinération de la matière mobilisée (section 4.1.2.1).
- 2^e) $Bu(t)$, le *burnup* adapté pour les réacteurs à sels fondus (section 4.1.2.2).
- 3^e) $\delta(t)$, le bilan de matière mobilisée avec τ_i , le temps associé à la consommation de la matière initiale $m_i(0)$ (section 4.1.2.3).

- 4^e) $\mu_i(t)$, la performance de consommation de la matière mobilisée (section 4.1.2.4).
- 5^e) $\pi_i(t)$, la proportion de fission (section 4.1.2.5).
- 6^e) $N_{n,i}(t)$ et $N_{p,i}(t)$, le nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération et le nombre de neutrons produits par celle-ci (section 4.1.2.6).
- 7^e) $R_{f,i}(t)$, la répartition isotopique des fissions (section 4.1.2.7).
- 8^e) $\vec{V}_i(t)$, l'évolution du vecteur isotopique (section 4.1.2.8).
- 9^e) $dpa(r, t)$, une estimation des dommages structuraux (section 4.1.2.9).
- 10^e) $N_{d,Am/Pu}(t)$, le nombre de neutrons disponibles pour la régénération du ^{238}Pu dans le cadre de l'incinération de l' ^{241}Am (section 4.1.2.10).
- 11^e) $\gamma_{Am/Pu}(t)$, le facteur de régénération de ce même cycle (section 4.1.2.11).

Seuls les critères nos 1, 3, 4, 5, 6, 9 et, indirectement, 8 sont utilisés dans les chapitres suivants, les autres critères étant présents à titre informatif.

4.1.2.1 Rendement d'incinération

Le rendement d'incinération quantifie la proportion de matière mobilisée ayant fissionné, formule (4.8). Il peut également s'appeler taux de fission de la matière mobilisée.

$$\eta_i(t) = \frac{m_{\text{fissionnée},i}(t)}{m_{\text{mobilisée},i}(t)} \quad (4.8)$$

Ce critère mesure ainsi la capacité d'un système à utiliser la matière mobilisée pour produire des fissions — et donc de l'incinération. Il s'agit notablement d'un critère important pour la comparaison de plusieurs concepts : il permet, par exemple, de mesurer le temps nécessaire pour fissionner 50 ou 80 % de la matière mobilisée (valeurs dépendant des réacteurs étudiés). Le critère le plus utilisé est le rendement d'incinération des actinides, défini par la formule (4.9) et appelé η par défaut.

$$\eta(t) = \eta_{\text{An}}(t) = \frac{\sum_{i \in \text{An}} m_{\text{fissionnée},i}(t)}{\sum_{i \in \text{An}} m_{\text{mobilisée},i}(t)} \quad (4.9)$$

4.1.2.2 Taux d'incinération ou *burnup* circulant

⊕ Interlude 4.1 : Réflexions sur la pertinence de la définition d'un *burnup* adapté aux RSF

Plusieurs raisons, explicitées dans la section 2.2.1.2, tendent à conclure que la notion classique de *burnup* ne peut s'appliquer dans le cadre d'un réacteur à combustible liquide circulant. En effet, cette caractéristique impose une homogénéisation du combustible interdisant son suivi comme dans le cadre d'assemblages solides : le combustible extrait du réacteur est une image intégrée de tous les combustibles alimentés depuis le dernier remplissage de celui-ci. Cette homogénéisation demanderait également de considérer un éventuel *burnup* sur l'ensemble du réacteur et durant toute sa durée de vie, ce qui n'est pas transposable à la fonction classique de suivi des combustibles solides. Considérant cela, les tentatives de transposition de la notion de *burnup* aux RSF à combustible liquide circulant paraissent peu pertinentes en regard de la trop grande dissemblance avec le *burnup* classique tel qu'il est utilisé et compris au sein de la communauté nucléaire internationale. Il serait ainsi plus préférable de définir de nouveaux critères d'évaluation des taux de combustion massique qui ne cherchent pas à faire une analogie qui pourrait être contreproductive mais qui, au contraire, renforceraient la perception et la compréhension intrinsèque de cette technologie de réacteurs qui constitue une véritable rupture avec les technologies classiques de réacteurs à combustible solide.

En multipliant le rendement d'incinération par l'énergie produite par les fissions, il est possible de définir un *burnup* adapté pour les réacteurs à sels fondus, formule (4.10).

$$Bu(t) = \frac{P_{th} t}{\sum_{i \in An} m_{mobilisée,i}(t)} \quad (4.10)$$

Ce *burnup* est exprimé en $GW_{th} \text{ d}/t_{NL}$ ou en $MW_{th} \text{ d}/kg_{NL}$ (abrégés respectivement en $GW \text{ d}/t$ et $MW \text{ d}/kg$).

4.1.2.3 Bilan de matière mobilisée

Le bilan de matière mobilisée est la différence entre la masse présente dans le réacteur et la masse mobilisée pour son fonctionnement, formule (4.11).

$$\delta_i(t) = m_i(t) - m_{mobilisée,i}(t) \quad (4.11)$$

Par convention, quand ce critère est négatif, il mesure une consommation de masse. Il est possible de définir le temps τ_i de consommation de la matière initiale avec la formule (4.12). Ce temps est un critère utilisé pour la comparaison de différents réacteurs.

$$\tau_i \in]0, t_{fin}] / \delta_i(\tau_i) = -m_i(0) \quad (4.12)$$

Enfin, ce critère est couramment exprimé en kg/MW_{th} en normalisant avec la puissance thermique du réacteur pour les comparaisons, formule (4.13).

$$\tilde{\delta}_i(t) = \frac{m_i(t) - m_{mobilisée,i}(t)}{P_{th}} \quad (4.13)$$

Lorsque la masse mobilisée est nulle, et que le critère est positif, il est question de production de l'isotope i . Dans la suite de ces travaux, ce critère est principalement observé sur les différents éléments présents dans les réacteurs étudiés, avec notamment $\tilde{\delta}_{Pu}$, $\tilde{\delta}_{Am}$ et $\tilde{\delta}_{Cm}$ mais aussi $\tilde{\delta}_U$ et $\tilde{\delta}_{Np}$ quand c'est nécessaire.

4.1.2.4 Performance de consommation de la matière mobilisée

La performance de consommation de la matière mobilisée – aussi appelée performance d'incinération – est la dérivée de l'inverse du bilan de consommation, formule (4.14).

$$\mu_i(t) = -\frac{d\delta_i(t)}{dt} = -\dot{\delta}_i(t) \quad (4.14)$$

Ce critère, positif par convention, mesure la capacité d'un réacteur à consommer la matière mobilisée à un instant donné. Il est couramment exprimé en kg/an mais il est possible de l'exprimer en kg/TWh_e – comme cela est fait notamment au sein du projet ISAC [110] – avec la formule (4.15) et en comptant 8766 heures dans une année.

$$\tilde{\mu}_i(t) = \frac{\mu_i(t)}{8766 P_e} \quad (4.15)$$

Le critère le plus utilisé dans ces travaux est la performance d'incinération des actinides mineurs, défini par la formule (4.16) et appelé μ (ou $\tilde{\mu}$) par défaut.

$$\mu(t) = \mu_{AM}(t) = \mu_{Np}(t) + \mu_{Am}(t) + \mu_{Cm}(t) \quad (4.16)$$

4.1.2.5 Proportion de fission

La proportion de fission — dont la définition (4.17) reprend la formule (1.19) de la section 1.2.3.1 — mesure la proportion d'un noyau i à faire une fission après une absorption : une proportion supérieure à 50 % indique qu'en moyenne, le noyau i a tendance à faire plus de fission que de capture. Ce critère est observé sur tous les isotopes d'intérêt, cf. section 4.1.1.

$$\pi_i(t) = \frac{\langle \sigma_{f,i} \phi \rangle(t)}{\langle \sigma_{\gamma,i} \phi \rangle(t) + \langle \sigma_{f,i} \phi \rangle(t)} \quad (4.17)$$

4.1.2.6 Nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération

L'estimation du nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération d'un noyau, présentée dans la section 1.2.3.5, est un critère permettant de quantifier l'économie de neutrons d'un réacteur. Il est défini pour chaque isotope avec la formule (4.18) qui est une réécriture de la formule (1.26) par récurrence, avec $\xi_{i \rightarrow j}$ le rapport de branchement de l'isotope i à l'isotope j s'il existe.

$$N_{n,i}(t) = 1 + \sum_{j \neq i} \xi_{i \rightarrow j} (1 - \pi_i(t)) N_{n,j}(t) \quad (4.18)$$

Le calcul de ce critère dépend de la longueur — appelée aussi profondeur — de la chaîne de désintégrations \mathcal{C}_i considérée et la dernière valeur considérée est prise égale à 1. Le tableau 4.2 montre quelques valeurs du critère $N_{n,i}$ pour quelques actinides d'intérêt en fonction de la profondeur, en utilisant les valeurs des figures mentionnées.

# \mathcal{C}_i	^{237}Np	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	^{241}Am	^{243}Am
1	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0
2	1,75	1,2	1,5	1,15	1,5	1,85	1,8
3	2,012	1,3	1,75	1,225	1,9	2,144	2,23
4	2,065	1,35	1,842	1,285	2,115	2,238	2,373
5	2,091	1,368	1,88	1,317	2,186	2,288	2,425
6	2,104	1,376	1,901	1,328	2,213	2,305	2,446

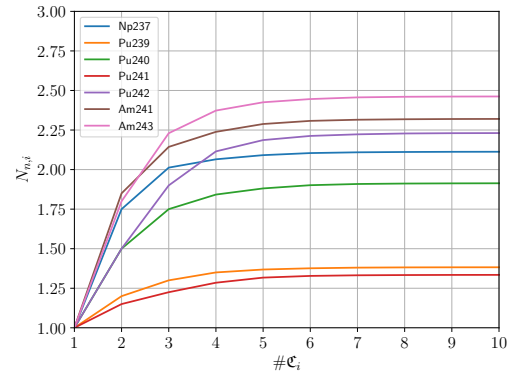


TABLEAU 4.2 & FIGURE 4.3 – $N_{n,i}$ pour quelques actinides d'intérêt pour différentes profondeurs de \mathcal{C}_i

La figure 4.3 trace les $N_{n,i}$ en fonction de la profondeur et montre que le critère converge bien. Enfin, la formule (4.19) présente le calcul du nombre de neutrons produits par l'incinération d'un noyau en reprenant la formule (1.28).

$$N_{p,i}(t) = \sum_{j \in \mathcal{C}_i} \xi_j \bar{\nu}_j(t) \pi_j(t) \prod_{k=i}^j (1 - \pi_k(t)) \quad (4.19)$$

L'interlude 4.2 présente un calcul alternatif de ces critères en considérant les chaînes \mathcal{C}_i comme des chaînes de Markov absorbantes. Ce calcul est celui utilisé dans la suite de ce travail de thèse et dans les outils présentés dans la section 4.3.1.

⊕ Interlude 4.2 : Calcul de $N_{n,i}$ et de $N_{p,i}$ avec une chaîne de Markov

Soit \mathcal{C} la chaîne de Markov présentée dans la figure 4.2. L'état (n, f) est un **état absorbant** de la chaîne : une absorption au sens de Markov correspond ainsi à une fission. Soient P la matrice de transition de \mathcal{C}

et Q la sous-matrice des états transitoires, définies dans la formule (4.20).

$$P = \begin{bmatrix} 1 & \vec{t0} \\ \vec{R} & Q \end{bmatrix} \quad \text{avec} \quad Q = [q_{i \rightarrow j}] = \begin{bmatrix} 0 & 1 - \pi_1 & 0 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & 0 & 1 - \pi_2 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 - \pi_3 & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \dots & 0 \end{bmatrix} \quad (4.20)$$

Cette matrice Q est ici présentée dans des cas simples comme par exemple, la capture sur un ^{239}Pu donnant avec une proportion de $1 - \pi_{239\text{Pu}}$ un ^{240}Pu . La figure 4.2 montre un embranchement plus complexe pour l' ^{241}Am . Ainsi, la ligne de cet isotope se compose des quatre éléments suivants, formules (4.21), pour prendre en compte le rapport de branchement de l' ^{242}Am et la proportion de ^{242}Cm faisant une décroissance pour produire du ^{238}Pu .

$$\left\{ \begin{array}{l} q_{^{241}\text{Am} \rightarrow ^{238}\text{Pu}} = 0,827 \times \xi_{242} (1 - \pi_{^{241}\text{Am}}) \frac{\lambda_{^{242}\text{Cm}}}{\lambda_{^{242}\text{Cm}} + \langle \sigma_{a,^{242}\text{Cm}} \phi \rangle} \\ q_{^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Pu}} = 0,173 \times \xi_{242} (1 - \pi_{^{241}\text{Am}}) \\ q_{^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm}} = 0,827 \times \xi_{242} (1 - \pi_{^{241}\text{Am}}) \frac{\langle \sigma_{a,^{242}\text{Cm}} \phi \rangle}{\lambda_{^{242}\text{Cm}} + \langle \sigma_{a,^{242}\text{Cm}} \phi \rangle} \\ q_{^{241}\text{Am} \rightarrow ^{242m}\text{Am}} = (1 - \xi_{242})(1 - \pi_{^{241}\text{Am}}) \end{array} \right. \quad (4.21)$$

De même, les formules (4.22) montrent les deux résultats de la capture sur un noyau $^{\text{AX}} : ^{\text{BY}}$ ou $^{\text{CZ}}$ par décroissance de $^{\text{BY}}$.

$$\left\{ \begin{array}{l} q_{^{\text{AX}} \rightarrow ^{\text{BY}}} = (1 - \pi_{^{\text{AX}}}) \frac{\langle \sigma_{a,^{\text{BY}}} \phi \rangle}{\lambda_{^{\text{BY}}} + \langle \sigma_{a,^{\text{BY}}} \phi \rangle} \\ q_{^{\text{AX}} \rightarrow ^{\text{CZ}}} = (1 - \pi_{^{\text{AX}}}) \frac{\lambda_{^{\text{BY}}}}{\lambda_{^{\text{BY}}} + \langle \sigma_{a,^{\text{BY}}} \phi \rangle} \end{array} \right. \quad (4.22)$$

Les triplets $(^{\text{AX}}, ^{\text{BY}}, ^{\text{CZ}})$ considérés sont $(^{240}\text{Pu}, ^{241}\text{Pu}, ^{241}\text{Am})$, $(^{243}\text{Am}, ^{244}\text{Cm}, ^{240}\text{Pu})$, $(^{242}\text{Cm}, ^{243}\text{Cm}, ^{239}\text{Pu})$ et $(^{243}\text{Cm}, ^{244}\text{Cm}, ^{240}\text{Pu})$. Une fois la matrice Q définie, il est possible de calculer la matrice fondamentale de la chaîne absorbante avec la formule (4.23).

$$F = [F_{ij}] = (I - Q)^{-1} \quad (4.23)$$

Ainsi, le nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération $N_{n,i}$ correspond au nombre moyen d'étapes avant absorption dans la chaîne en partant de l'état i : il s'agit de la somme des termes de la i^{e} ligne de la matrice fondamentale, formule (4.24).

$$N_{n,i} = \sum_j F_{ij} \quad (4.24)$$

Enfin, pour calculer le nombre de neutrons émis lors de cette incinération, il suffit de pondérer les termes de la i^{e} ligne par la proportion de fission et le nombre de neutrons moyens émis par cette dernière, formule (4.25).

$$N_{p,i} = \sum_j \bar{\nu}_j \pi_j F_{ij} \quad (4.25)$$

4.1.2.7 Répartition isotopique des fissions

La répartition isotopique des fissions — exprimée en ‰ — est une mesure de la contribution de chaque isotope au nombre de fissions totales, ce dernier étant directement lié à la puissance thermique du réacteur et donc n'évoluant pas en fonction du temps. La formule (4.26) définit ainsi ce critère comme étant le taux de fission de l'isotope i sur le taux de fission total — ou encore sur la somme de tous les taux de fission.

$$R_{f,i}(t) = \frac{\langle \sigma_{f,i} \phi \rangle(t)}{\sum_j \langle \sigma_{f,j} \phi \rangle(t)} = \frac{\langle \sigma_{f,i} \phi \rangle(t)}{\langle \sigma_{f,\text{tot}} \phi \rangle(t)} \quad (4.26)$$

Ce critère, associé aux autres, permet ainsi de savoir qui produit en majorité les fissions.

4.1.2.8 Évolution du vecteur isotopique

L'évolution temporelle du vecteur isotopique des éléments d'intérêt (plutonium \vec{V}_{Pu} , américium \vec{V}_{Am} , curium \vec{V}_{Cm}) est une observable intéressante à regarder pour les analyses de performance.

4.1.2.9 Dommages structurels

Les dommages structurels sont une estimation des dégâts provoqués par le flux neutronique sur les matériaux de structure. Ceux-ci peuvent être estimés de deux manières. La première, par le calcul des dpa (**D**éplacements **P**ar **A**tome), en utilisant l'estimateur de MCNP par la formule (4.27) avec, pour un matériau donné et une position \vec{r} dans ce matériau, E l'énergie du neutron incident, E_d l'énergie de déplacement et σ_{dpa} la section efficace de déplacement du matériau [27].

$$\text{dpa}(\vec{r}, t) = \frac{0,8E(\vec{r}, t) \langle \sigma_{\text{dpa}} \phi \rangle(t)}{2E_d(\vec{r})} \quad (4.27)$$

La seconde est la quantité d'hydrogène N_{H} et d'hélium N_{He} produite respectivement via les réactions (n,p) et (n, α) dans les matériaux de structure [27]. Ces critères ne sauraient être considérés dans leur valeur absolue mais par les valeurs relatives entre différents concepts de réacteurs.

4.1.2.10 Nombre de neutrons disponibles dans le cycle $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}-^{242m}\text{Am}$

L'un des leviers d'action de l'incinération de l' ^{241}Am est le cycle de régénération $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}-^{242m}\text{Am}$ présenté dans la section 1.2.3.4. La formule (4.28) présente le calcul du nombre de neutrons disponibles de ce cycle en reprenant les formules (1.23) et (1.24) et en utilisant le rapport de branchement de l' ^{242}Am , ξ_{242} .

$$N_{d,\text{Am/Pu}}(t) = \xi_{242} \left(\bar{\nu}_{238\text{Pu}}(t) - \frac{2}{\pi_{238\text{Pu}}(t)} \right) + (1 - \xi_{242}) \left(\bar{\nu}_{242m\text{Am}}(t) - \frac{2}{\pi_{242m\text{Am}}(t)} \right) \quad (4.28)$$

Ainsi, ce critère permet d'estimer la capacité d'un réacteur à mettre en œuvre ce cycle de régénération et donc *in fine* l'incinération de l' ^{241}Am .

4.1.2.11 Facteur de régénération et temps de doublement

Une autre façon de mesurer l'efficacité de régénération d'un cycle est avec le **facteur de régénération**, ou *breeding ratio* en anglais. Pour un cycle de régénération i/j avec i l'isotope fertile et j l'isotope fissile, le facteur $\gamma_{i/j}$ est défini par le taux de capture du fertile sur le taux d'absorption du fissile [159], voir formule (4.29).

$$\gamma_{i/j} = \frac{\langle \sigma_{\gamma,i} \phi \rangle}{\langle \sigma_{f,j} \phi \rangle + \langle \sigma_{\gamma,j} \phi \rangle} \quad (4.29)$$

Le critère $\gamma_{\text{Am/Pu}}$ est donc un outil supplémentaire dans l'analyse des performances d'incinération de l' ^{241}Am . Mais ce facteur de régénération est également utilisé pour le cycle U/Pu dans la suite de ces travaux.

Dans le cas de ce cycle, le plutonium n'est pas purement du ^{239}Pu et il est intéressant d'évaluer une **équivalence** ^{239}Pu pour les autres isotopes du plutonium. La formule 4.30 explicite le calcul des poids d'équivalence ^{239}Pu [67].

$$\forall i \in \{\vec{U}, \vec{\text{Pu}}\}, \omega_i = \frac{\sigma_i^+ - \sigma_{^{238}\text{U}}^+}{\sigma_{^{239}\text{Pu}}^+ - \sigma_{^{238}\text{U}}^+} \quad \text{avec} \quad \sigma_i^+ = \sigma_{f,i}(\bar{\nu}_i - 1) - \sigma_{\gamma,j} \quad (4.30)$$

Enfin, une définition plus précise du facteur de régénération peut être écrite en utilisant ces poids [67], voir formule (4.31).

$$\gamma_{\text{U/Pu}} = \frac{\sum_i (1 - \omega_i) \langle \sigma_{\gamma,i} \phi \rangle}{\sum_i \omega_i (\langle \sigma_{f,i} \phi \rangle + \langle \sigma_{\gamma,i} \phi \rangle)} \quad (4.31)$$

Lors du déploiement d'un parc de réacteurs surgénérateurs, il peut être intéressant d'estimer le temps nécessaire pour un réacteur pour produire suffisamment de matière fissile j pour démarrer un deuxième réacteur. Ce temps, appelé temps de doublement, est défini par la quantité de matière fissile initiale sur la quantité surproduite [67] dans la formule (4.32)

$$t_{d,i/j} = \frac{m_j(0)}{\dot{m}_{\text{produite},j}(\gamma_{i/j} - 1)} \quad (4.32)$$

4.1.3 Objectifs d'un RSF incinérateur

Les critères présentés dans la section précédente permettent d'avoir une idée du comportement d'un réacteur en se tenant à leur description qualitative. La question importante est de savoir comment évaluer quantitativement ces critères afin d'avoir une interprétation des performances d'incinération d'un réacteur. Une première approche est de lister les objectifs attendus pour les principaux critères en identifiant les valeurs objectifs. Le tableau 4.3 présente ces objectifs pour trois types de réacteurs assez différents :

- un réacteur régénérateur (ou surgénérateur) en cycle U/Pu. Le choix de ce cycle est motivé par l'utilisation du plutonium en tant que matière fissile afin de simplifier la lecture du tableau. Des conclusions similaires peuvent être faites avec le cycle Th/U en remplaçant le plutonium par l'uranium, jouant le même rôle, dans les critères. L'objectif de ce réacteur est donc de régénérer du plutonium ;
- un réacteur incinérateur de plutonium, appelé ici « convertisseur » pour des raisons de simplicité de lecture. La raison d'être d'un tel réacteur est donc d'être consommateur net de plutonium ;
- un réacteur incinérateur d'actinides mineurs. L'objectif de ce type de réacteur est avant tout de consommer les AM, le plutonium servant à amorcer et contrôler la réaction en chaîne.

Plusieurs points essentiels à ce stade :

- les réacteurs surgénérateur et convertisseur ont certains objectifs similaires en ce qui concerne le plutonium comme le rendement d'incinération, le bilan de consommation ou encore la proportion de fission ;
- les incinérateurs, de plutonium ou d'AM, ont des objectifs similaires en ce qui concerne les actinides mineurs en essayant de minimiser leur inventaire — soit maximiser leur incinération — tandis que dans le cas d'un réacteur surgénérateur, l'objectif n'est pas de consommer tous les AM produits.

Ces critères sont utilisés dans le chapitre 5 dans le but de comparer différents types de réacteurs et les objectifs cités précédemment sont mis en œuvre pour l'optimisation de réacteurs originaux.

Critère	Régénérateur U/Pu	« Convertisseur » de plutonium	Incinérateur d'AM
η	Le plus grand possible		
η_{Pu}	Supérieur à 1	Proche de 1 le plus vite	Le plus grand possible
η_{AM}	Pas d'importance	Proche de 1 le plus vite	Le plus grand possible
τ_{Pu}	<i>Non concerné</i>	Le plus petit possible	Pas d'importance
τ_{AM}	Pas d'importance	<i>Non concerné</i>	Le plus petit possible
μ_{Pu}	Le plus grand possible		Le plus petit possible
μ_{AM}	Pas d'importance	Le plus grand possible	
π_{Pu}	Le plus proche de 1		Pas d'importance
π_{AM}	Pas d'importance	Le plus proche de 1	
$N_{n,Pu}$	Le plus petit possible		
$N_{n,AM}$	Pas d'importance	Le plus petit possible	
$N_{p,Pu}$	Le plus grand possible		
$N_{p,AM}$	Pas d'importance	Le plus grand possible	
$N_{f,Pu}$	Le plus grand possible		Le plus petit possible
$N_{f,AM}$	Le plus petit possible	Pas d'importance	Le plus grand possible
dpa	Le plus petit possible		
$N_{d,Am/Pu}$	Pas d'importance	Le plus grand possible	
$\gamma_{Am/Pu}$	Pas d'importance	Le plus grand possible	

TABLEAU 4.3 – Objectifs sur les critères d'incinération pour un régénérateur et deux incinérateurs Pu et AM

💡 À retenir (4.1)

Un réacteur incinérateur est par métonymie un réacteur consommant plus d'actinides qu'il n'en produit, par l'enchaînement de réactions neutroniques menant à terme à des fissions. Afin de réaliser cet objectif, des critères de performance d'incinération sont définis pour quantifier la capacité d'un réacteur à incinérer une matière. Ces critères doivent se trouver dans des plages différentes selon la raison d'être du réacteur étudié : un incinérateur de plutonium n'a pas le même comportement attendu qu'un incinérateur d'actinides mineurs.

4.2 Contribution à l'adaptation des outils de modélisation de RSF incinérateurs

4.2.1 Problématique

Durant les années précédant cette thèse, les différents travaux menés sur les petits réacteurs à sels fondus incinérateurs au CNRS via les thèses de Laura Mesthiviers [27] et d'Hugo Pitois [67] ont relevé plusieurs comportements du code REM appelant à de nouveaux développements. Ces observations peuvent être classées selon deux catégories : certains effets sont liés aux contraintes et aux paramètres disponibles dans le code tandis que d'autres sont inhérents au modèle d'alimentation du module ERE.

Certaines considérations au niveau de la chimie, explicitée dans le chapitre 2, n'étaient pas mises en œuvre. L'étude de réacteurs plus petits que le MSFR de référence a fait surgir des comportements tels que l'éloignement de la composition de l'eutectique de température de fusion minimale, appelant à rajouter des contraintes sur les alimentations pour corriger ces effets. Également, le changement de taille des réacteurs a eu un impact sur la variation relative du volume du sel pendant l'évolution, atteignant plusieurs pourcents [27, 105].

Certaines simulations pouvaient avoir des fluctuations brutales sur la valeur des débits d'alimentation pouvant varier très rapidement de la valeur minimale à la valeur maximale autorisée [67]. La multiplication du nombre de contraintes sur les alimentations, et donc du nombre d'alimentations, a tendance à empirer les instabilités du modèle précédemment relevées [144]. Enfin, dans le cadre de réacteurs incinérateurs d'américium, le cycle de régénération $^{241}\text{Am}/^{238}\text{Pu}$ provoque une insertion de réactivité à retardement, le plutonium mettant environ six mois à apparaître après capture sur l'américium [27]. Ce décalage n'est pas anticipé par le code REM et les instabilités déjà présentes pouvaient exagérer le phénomène.

Dans le cadre de cette thèse, de nouveaux développements ont donc été réalisés dans les codes ERE et REM afin de stabiliser les alimentations (section 4.2.2.2) et de prendre en compte de nouveaux paramètres physicochimiques spécifiques aux RSF incinérateurs (section 4.2.2.1) [143, 144].

4.2.2 De nouveaux développements dans les codes ERE et REM

4.2.2.1 De nouvelles contraintes et des paramètres oubliés

Une plongée dans les sources des différents modules composant le code REM a été réalisée pour comprendre le fonctionnement interne du code. Cette compréhension a été rendue nécessaire, d'une part, afin de résoudre les comportements relevés en amont et, d'autre part, afin d'expliquer certains écarts constatés avec d'autres codes (cf. section 3.3.3). Il est ressorti de cette exploration deux observations : certains paramètres étaient présents dans le code depuis plusieurs années sans jamais avoir été utilisés et les descriptions faites du code par les personnes ayant travaillé dessus auparavant peuvent parfois s'éloigner de la réalité de ce que fait réellement le code pour décrire à la place le comportement prévu par celles-ci.

Un exemple de paramètre oublié — bien qu'implémenté depuis longtemps — est l'énergie considérée pour les données de rendement de fission. Les bases de données possèdent en général les rendements de fission pour trois valeurs d'énergie (voir figure 1.11 section 1.2.1.2) : 25,3 meV, 400 ou 500 keV et 14 MeV. Un paramètre existant dans le code REM permet de choisir pour quelle valeur d'énergie prendre ces rendements :

- type « rapide » avec les valeurs à 500 keV ;
- type « thermique » avec les valeurs à 25,3 meV ;
- type « épithermique » avec la moyenne entre les valeurs thermiques et rapides ;
- type « plat » avec la moyenne entre les trois valeurs à 25,3 meV, 500 keV et 14 MeV.

Par défaut, le type utilisé était le type « plat » mais, dans les réacteurs considérés dans le cadre de ce travail, la valeur du flux autour de 500 keV est supérieure de plusieurs ordres de grandeur à celles des deux autres énergies. Ainsi, toutes les simulations considérées le sont avec le type « rapide » pour les rendements de fission.

Certaines constantes utilisées au cours de l'évolution ont été rendues personnalisables :

- l'énergie libérée par une fission, ε_i dans l'équation (3.30) de la section 3.3.2.5, dont la valeur est identique quel que soit l'isotope i et dont la valeur est prise par défaut à 200 MeV ;
- le rapport de branchement de l' ^{242}Am , ξ_{242} , dont la valeur par défaut est de 0,9 [160] ;
- la valence des éléments, avec une distinction si le sel est un fluorure ou un chlorure.

Au cours d'un calcul en évolution, le volume ionique du sel peut s'écarter du volume géométrique défini par les dimensions du réacteur. Mais jusqu'alors, la densité du sel renseignée à MCNP était calculée avec le volume géométrique, sans prendre en compte cet écart. Ainsi, un vase d'expansion dynamique a été ajouté au cours de la thèse d'Hugo Pitois [67]. Il s'agit d'une cellule placée au-dessus du réacteur et composée de deux sous-cellules : une contenant du sel et la seconde contenant un gaz, généralement de l'argon. La particularité du vase est que le volume de la cellule de sel peut changer au cours de l'évolution : avant chaque pas MCNP, et donc avant de reconstruire la géométrie du réacteur, REM a la possibilité de calculer le volume ionique du sel (voir section 2.1.3.2) et d'ajuster le niveau du vase pour faire correspondre le volume géométrique avec le volume ionique. Plusieurs études ont été réalisées avec cette possibilité dans la thèse d'Hugo Pitois [67], la figure 4.4 montre par ailleurs deux géométries du MSFR-Cl avec deux niveaux du vase d'expansion différents pour illustration.

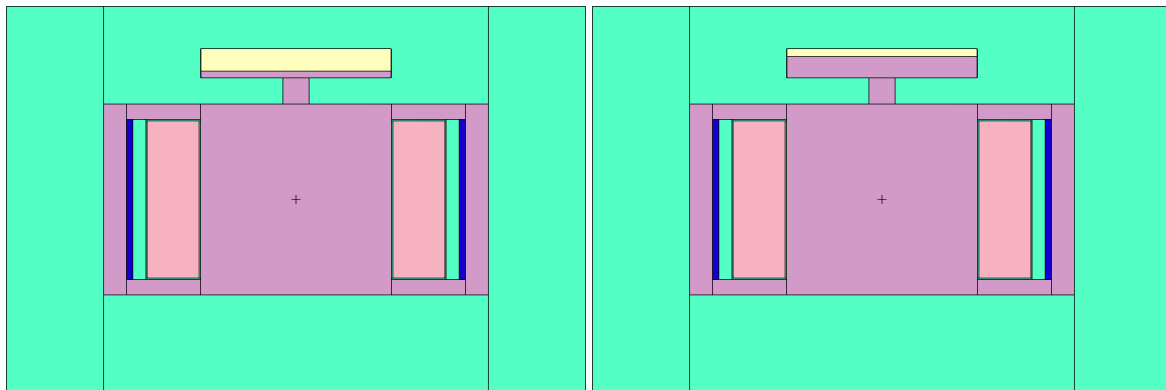


FIGURE 4.4 – Visualisations MCNP de la géométrie du MSFR-Cl avec le vase d'expansion [67, 144]

L'ajout de cette fonctionnalité s'est accompagné de la possibilité de désactiver la correction automatique de la densité du sel. Par défaut, lorsque celle-ci est activée, le code REM va corriger la densité du sel avant chaque ajustement des alimentations par le module ERE (voir figure 3.8 section 3.3.2.1) et avant chaque pas MCNP de deux façons, au choix :

- le mode de référence, qui divise la masse totale du sel par le volume géométrique du circuit combustible, calculé au début de l'évolution ;
- le mode alternatif, qui divise la masse totale du sel par le volume ionique mis à jour tout au long de l'évolution.

Dans la suite de ce travail, le vase d'expansion n'est pas utilisé puisque les développements présentés dans la section 4.2.2.2 permettent de stabiliser le volume du sel combustible et le mode de correction de la densité utilisé est explicité au cas par cas.

Enfin, de nouvelles contraintes ont été ajoutées en complément de la liste historique de la section 3.3.2.4 :

- la proportion des alcalins f_A , des alcalinoterreux f_{AT} et du groupe composé des deux f_{AAT} ;

- le volume ionique V , calculé avec les rayons ioniques r_i présentés dans la section 2.1.3.2, les proportions atomiques N_i et un coefficient comparant le volume géométrique $V_{\text{géom}}$ et le volume ionique V_0 estimé au tout début de l'évolution [143], formule (4.33) :

$$V = \frac{4}{3}\pi \sum_i r_i^3 N_i \times \frac{V_{\text{géom}}}{V_0} \quad (4.33)$$

- l'électroneutralité e du sel, calculée comme la somme de toutes les valences, voir section 2.1.3.5 ;
- la qualité fissile du plutonium Q_{fis} , égale au rapport entre la quantité de ^{239}Pu et de ^{241}Pu et la quantité totale de plutonium.

Lorsque le volume ionique est contraint, l'utilisation du vase d'expansion dynamique n'a pas de sens. Aussi, le choix du mode de correction de la densité n'a pas beaucoup d'importance puisqu'en toute logique, les deux volumes ioniques et géométriques sont identiques. Enfin, le tableau 4.4 récapitule toutes les contraintes disponibles à date dans le code REM avec leur symbole associé et utilisé dans la suite de ce travail.

Contrainte	Symbole	Remarque
Réactivité	k_{eff}	Cf. formule (3.26) page 88
Proportion d'un élément dans le sel	f_Z	$Z \in \llbracket 1, 103 \rrbracket$
Proportion d'un groupe d'éléments	f_X	$X \in \{A, AAT, AT, An, TRU\}$
Volume ionique	V	Cf. formule (4.33)
Électroneutralité	e	Cf. section 2.1.3.5
Qualité fissile du plutonium	Q_{fis}	

TABLEAU 4.4 – Contraintes disponibles dans le code REM

4.2.2.2 Une nouvelle gestion des alimentations

Les instabilités sur les alimentations relevées dans les travaux précédents et constatées dans les débuts de ce travail de thèse semblaient indiquer que les alimentations et les contrôles étaient corrélés deux à deux tout en étant indépendants des autres. La relecture du code source de REM a permis de confirmer cette intuition et le fonctionnement réel du code est celui expliqué dans la section 3.3.2.4 : à chaque pas d'ajustement, le débit de l'alimentation k était ajusté afin de corriger la contrainte k sans prendre en compte les autres¹.

La nouvelle stratégie d'ajustement adoptée dans le code ERE est de mettre à jour toutes les alimentations en même temps à chaque cycle de contrôle [143, 144]. Pour cela, les n équations (3.28) de la section 3.3.2.4 – n étant le nombre d'alimentations – sont vues comme une seule équation vectorielle (4.34) avec $J_{\vec{C}}(\vec{S})$ la matrice jacobienne du système définie dans la formule (4.35), \vec{S} le vecteur des débits des alimentations et $\vec{C}(\vec{S})$ le vecteur des contraintes associées à ces alimentations.

$$\Delta \vec{C}(\vec{S}) = \frac{\partial \vec{C}(\vec{S})}{\partial t} \Delta t + J_{\vec{C}}(\vec{S}) \Delta \vec{S} \quad (4.34)$$

Ainsi, toutes les contraintes dépendent de toutes les alimentations. L'ancien algorithme, présenté succinctement dans la section 3.3.2.4, agit comme si la matrice jacobienne (4.35) était diagonale.

1. Une analogie apparue au cours de ce travail est celle de l'accordage d'un violoncelle : le cordier étant mobile, si la corde de *do* est parfaitement accordée, le fait de modifier la tension sur la corde de *sol* adjacente va légèrement la désaccorder. Il est donc nécessaire de repasser plusieurs fois pour un accordage parfait.

$$J_{\vec{C}}(\vec{S}) = \begin{bmatrix} \frac{\partial C_1(\vec{S})}{\partial S_1} & \dots & \frac{\partial C_1(\vec{S})}{\partial S_n} \\ \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial C_n(\vec{S})}{\partial S_1} & \dots & \frac{\partial C_n(\vec{S})}{\partial S_n} \end{bmatrix} \quad (4.35)$$

De la même manière, les équations (3.29) de la section 3.3.2.4 deviennent l'équation vectorielle (4.36).

$$\Delta \vec{S} = J_{\vec{C}}^{-1}(\vec{S}) \left(\vec{C}^{\text{cible}} - \vec{C}(\vec{S}) - \Delta t \left\langle \frac{\partial \vec{C}(\vec{S})}{\partial t} \right\rangle_{\text{pairs}} \right) \quad (4.36)$$

À l'initialisation du code, chaque alimentation est renseignée avec différents paramètres :

- le débit initial $S_k(0)$;
- le débit minimal S_k^{\min} et maximal S_k^{\max} ;
- un facteur de correction p_k^c ;
- un facteur de variation p_k^v et sa valeur maximale $p_k^{v,\max}$;
- une variation absolue ΔS_k^{\max} .

Chaque cycle de contrôle comprend $2(n+1)$ pas d'ajustement (composés de pas IME, cf. section 3.3.2.5) :

- les pas impairs servent à calculer les dérivées formant les colonnes de la matrice jacobienne en modifiant une des alimentations et en regardant l'impact de ce changement sur toutes les contraintes, cf. formule (4.37) :

$$\frac{\partial \vec{C}(\vec{S})}{\partial S_k} = \frac{\vec{C}(t + \Delta t) - \vec{C}(t)}{\max(\Delta S_k^{\max}, p_k^v S_k)} \quad (4.37)$$

- les pas pairs servent à calculer les dérivées temporelles des contraintes sans ajustements des alimentations ($\Delta \vec{S} = \vec{0}$) pour qu'à la fin du cycle, la moyenne soit prise pour calculer les changements d'alimentation dans la formule (4.36).

Une fois les $2(n+1)$ pas d'ajustement réalisés, la formule 4.36 est appliquée pour obtenir les variations à appliquer puis, pour chaque alimentation k :

- la valeur de ΔS_k est corrigée avec le facteur de correction, donnant la formule (4.38) :

$$\Delta S'_k = \Delta S_k p_k^c \quad (4.38)$$

- le nouveau débit est calculé avant test, voir formule (4.39) :

$$S'_k = S_k + \Delta S'_k \quad (4.39)$$

- si le test (4.40) est concluant, alors le nouveau débit S'_k prend la valeur testée :

$$S'_k < \max \left(S_k^{\min}, \frac{S_k}{1 + p_k^{v,\max}} \right) \Rightarrow S'_k = \max \left(S_k^{\min}, \frac{S_k}{1 + p_k^{v,\max}} \right) \quad (4.40)$$

- sinon, si le test (4.41) est concluant, alors le nouveau débit S'_k prend la valeur testée :

$$S'_k < \min (S_k^{\max}, S_k(1 + p_k^{v,\max})) \Rightarrow S'_k = \min (S_k^{\max}, S_k(1 + p_k^{v,\max})) \quad (4.41)$$

- enfin, le débit est mis à jour, voir formule (4.42) :

$$S_k(t + \Delta t) = S'_k(t) \quad (4.42)$$

Enfin, il est à noter qu'il est possible de renseigner dans les données d'entrée le nombre de pas d'ajustement minimum entre deux calculs MCNP, le nombre par défaut étant de 10.

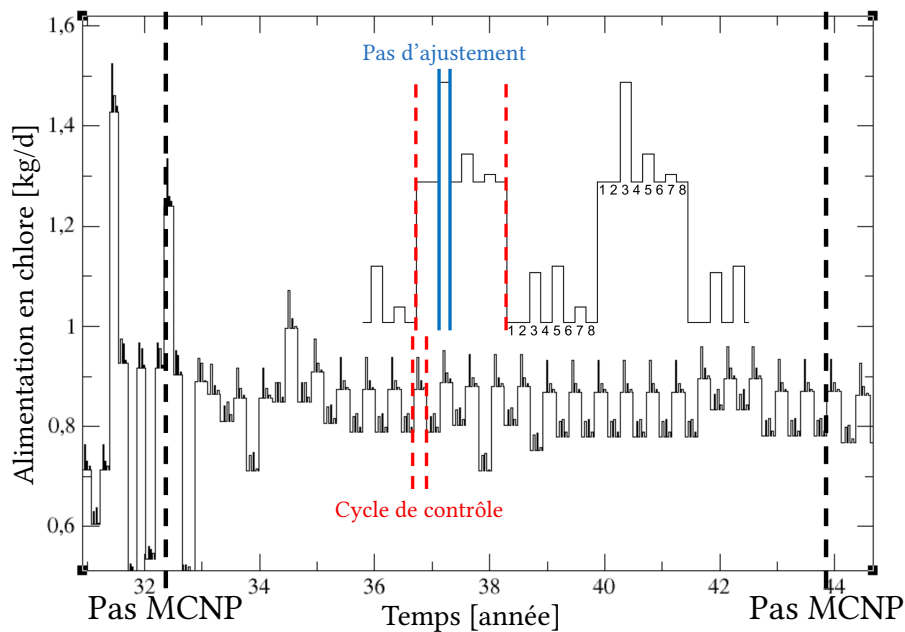


FIGURE 4.5 – Détail des différentes étapes pendant un pas MCNP sur un débit de chlore [143, 144]

La figure 4.5 montre le débit d'alimentation en chlore dans une simulation comprenant trois alimentations : une NaCl, une MgCl₂ et une PuCl₃. Le débit total de chlore montre une projection de ces trois alimentations puisque chacune contient du chlore. Les cycles de contrôles sont montrés en rouge tandis que les pas d'ajustement sont en bleu. Chaque changement dans le débit de chlore correspond à un pas d'ajustement et une fois les 2(3 + 1) = 8 pas complétés, toutes les alimentations sont mises à jour en même temps et un nouveau cycle de contrôle commence.

4.2.2.3 Visualisation de la matrice jacobienne

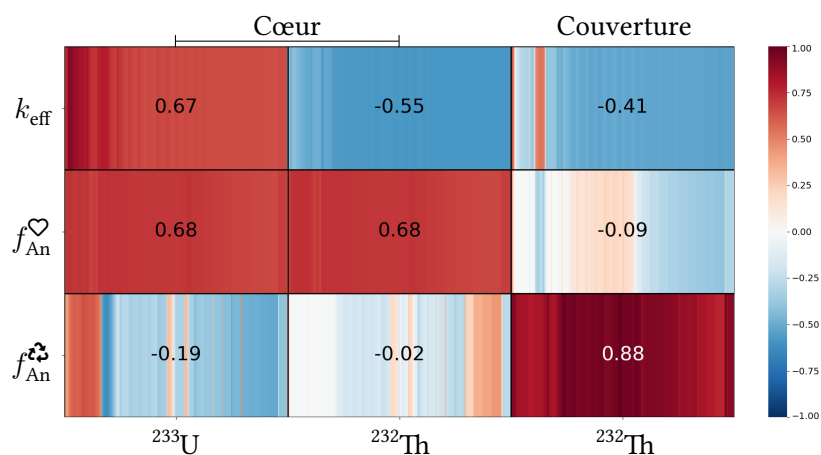


FIGURE 4.6 – Visualisation de l'évolution de la matrice jacobienne

Les nouveaux développements présentés dans ce chapitre prennent en considération que toutes les alimentations peuvent avoir des influences sur toutes les contraintes. Une bonne façon de visualiser ces influences est de visualiser la matrice jacobienne elle-même, et ce à chaque cycle de contrôle. Les valeurs numériques exactes ne sont pas pertinentes, car dépendantes du débit des alimentations, donc des réacteurs. Ce qui est intéressant à regarder, ce sont les contributions relatives de chaque alimentation pour chaque contrainte. Pour cela, chaque valeur d'une alimentation de chaque ligne de la jacobienne est comparée aux autres valeurs de la ligne selon un calcul développé dans le cadre de cette thèse et précisé dans l'interlude 4.3. Cette visualisation est un outil utile pour, d'une part, vérifier que les problèmes considérés par le lancement de calculs d'évolution sont bien posés physiquement (au niveau des tendances) et numériquement (au niveau des oscillations) et, d'autre part, aider à la conception d'esquisses comme celles présentées dans le chapitre 5.

La figure 4.6 montre à titre d'exemple illustratif le résultat de cette visualisation pour le MSFR de référence, montrant les contributions relatives des deux alimentations en ^{233}U et ^{232}Th en cœur (♥) et l'alimentation en ^{232}Th en couverture (♻️) pour chaque contrainte, le k_{eff} et les fractions d'actinides f_{An} . Les contributions positives sont représentées en rouge et les négatives en bleu.

⊕ Interlude 4.3 : Calcul des vecteurs de sensibilités

Soit $J_{\vec{C}}(\vec{S})$ la matrice jacobienne d'un système à un instant donné, définie par la formule (4.43).

$$J_{\vec{C}}(\vec{S}) = \left[\frac{\partial C_i(\vec{S})}{\partial S_j} \right]_{1 \leq i, j \leq n} = [J_{i,j}]_{1 \leq i, j \leq n} \quad (4.43)$$

Pour chaque ligne i de la matrice, chaque valeur de la ligne est divisée dans un premier temps par la dérivée temporelle moyenne de la contrainte afin de comparer la variation de la contrainte par le débit avec la variation « naturelle » de cette dernière. Si la valeur est supérieure ou égale à 1, le logarithme décimal de la valeur absolue de la division est réalisée. Cela renseigne sur l'écart en ordre de grandeur entre les deux éléments. Sinon, la valeur est mise à 1, ainsi le logarithme vaut 0. Le signe de la dérivée est appliqué pour redonner l'information du sens de variation de la contrainte. Cela donne la formule (4.44) appliquée à chaque élément de la matrice.

$$\tilde{J}_{\vec{C}}(\vec{S}) = \left[\text{sgn} \left(\frac{\partial C_i(\vec{S})}{\partial S_j} \right) \times \log \left| \frac{\frac{\partial C_i(\vec{S})}{\partial S_j}}{\left\langle \frac{\partial C_i(\vec{S})}{\partial t} \right\rangle_{\text{pairs}}} \right| \right]_{1 \leq i, j \leq n} = [\tilde{J}_{i,j}]_{1 \leq i, j \leq n} \quad (4.44)$$

Enfin, de nouveau pour chaque ligne i , chaque valeur de la ligne est divisée par la norme euclidienne de tous les éléments de la ligne, voir formule (4.45)

$$\hat{J}_{\vec{C}}(\vec{S}) = \left[\frac{\tilde{J}_{i,j}}{\sqrt{\sum_k \tilde{J}_{i,k}^2}} \right]_{1 \leq i, j \leq n} \quad (4.45)$$

Cette normalisation permet de rendre chaque dérivée comparable indépendamment de leur amplitude absolue, permettant d'interpréter chaque ligne de la nouvelle matrice normée $\hat{J}_{\vec{C}}(\vec{S})$ comme un vecteur directionnel de sensibilité renseignant sur la direction de dépendance de chaque contrainte par rapport aux alimentations.

4.2.3 Application et premiers résultats sur le MSFR de référence

Le concept de MSFR de référence est présenté dans la section 2.4.1. Un *benchmark* de simulation neutronique en évolution du MSFR de référence, mis au point durant le projet européen EVOL il y a une dizaine d'années [161], est régulièrement calculé afin d'assurer la stabilité du code REM au gré des développements. La section 4.2.3.1 présente la configuration du réacteur utilisée dans le cadre des simulations neutroniques en évolution. Cette configuration, avec une version simplifiée de la géométrie du réacteur, est en partie justifiée dans la section 4.3.2.1 traitant de l'adaptation nécessaire de celle-ci pour les études neutroniques. La section 4.2.3.2 présente le schéma de calcul développé dans le cadre du projet EVOL et ayant servi de cadre pour les développements présentés dans le chapitre 4. Enfin, l'impact de ces développements est illustré dans la section 4.2.3.3.

4.2.3.1 Présentation du cas simulé

Dans le cadre des différents *benchmarks* réalisés dans le projet EVOL [161], une description de la configuration du MSFR de référence a été réalisée [89]. Cette configuration utilise une géométrie simplifiée du réacteur (voir section 4.3.2.1) et construite avec des outils similaires à ceux présentés dans les sections 3.5.3 et 4.3.2. Le tableau 4.5 montre les caractéristiques géométriques nécessaires pour construire cette géométrie avec de tels outils. La composition de l'alliage NiCrW utilisé comme matériau de structure se trouve dans l'annexe A - 2.

Référence	[89]
Volume de sel total [m ³]	18
Volume du cœur [m ³]	9
Facteur d'élanement	1
Fraction de sel en cœur [%]	50
Hauteur des plénums [cm]	18.75
Épaisseur couverture [cm]	46
Épaisseur paroi couverture [cm]	2
Matériau paroi couverture	NiCrW
Densité paroi couverture [g/cm ³]	10
Épaisseur protection [cm]	20
Matériau protection	B ₄ C
Densité protection [g/cm ³]	2,52

TABLEAU 4.5 – Caractéristiques géométriques du MSFR de référence

Deux versions du MSFR de référence ont été proposées pour ce benchmark EVOL [1, 89, 153, 161] :

- une version démarrée avec de l'²³³U;
- une version démarrée avec de l'uranium enrichi à 13 % en ²³⁵U et des transuraniens provenant de combustibles UNE usés selon une composition optimisée dans EVOL avec des critères neutroniques, sur les matériaux et la chimie.

Le tableau 4.6 présente les caractéristiques des sels initiaux pour ces deux versions du MSFR de référence. Il est à noter que les couvertures fertiles ont la même composition dans les deux versions. Il présente également les paramètres utilisés dans les simulations REM pour ces deux versions du MSFR de référence. Il est à noter que, durant l'évolution, le réacteur est simulé en fonctionnement pleine puissance, avec un facteur de charge de 100 %.

Version	Démarrage ^{enr}U	Démarrage ^{233}U
Composition du sel en cœur [% _{mol}]	77,5 LiF 22,5 AnF ₄	77,5 LiF 22,5 AnF ₄
Enrichissement en 7Li [% _{mol}]	99,995	99,995
Composition des actinides [% _{mol}]	29,4 ^{232}Th 54,6 ^{enr}U 16 TRU	88,82 ^{232}Th 11,18 ^{233}U
Densité [g/cm ³]	4,1249	4,1249
Composition du sel dans la couverture [% _{mol}]	77,5 LiF 22,5 $^{232}ThF_4$	77,5 LiF 22,5 $^{232}ThF_4$
Enrichissement en 7Li [% _{mol}]	99,995	99,995
Densité [g/cm ³]	4,1249	4,1249
Puissance thermique [MW _{th}]	3000	
Température sel [K]	895	
Température structures [K]	895	
Temps d'évolution [ans]	200	
Δt_1 [d]	10	
Cycles MCNP	250	
<i>Dont inactifs</i>	50	
n_{src}	2500	

TABLEAU 4.6 – Caractéristiques des sels initiaux et paramètres REM de la simulation du MSFR de référence

4.2.3.2 Schémas d'extraction et d'alimentation

Le tableau 4.7 présente le schéma d'extraction utilisé pour la simulation du MSFR de référence développé dans le cadre du projet EVOL. Celui-ci est composé de trois extractions pour le cœur et la couverture [89] :

- le système de bullage des PF gazeux et insolubles, simulé avec une demi-vie $t_{1/2}$ de 30 secondes, soit une pseudo-période τ de 43 secondes (voir formule (3.20) page 86) ;
- l'extraction et le traitement chimique de 40 l/d de sel combustible et de 0,4 l/d de sel issu de la couverture fertile — soit 0,005 % des 7,33 m³ de la cellule — donnant une pseudo-période de respectivement 450 jours pour le cœur et de 50 ans pour la couverture ;
- l'extraction de certains transthoriens. Il s'agit d'une part dans le cœur de l'extraction du protactinium avec la même pseudo-période que le traitement pyrochimique de 450 jours afin d'éviter une sur-criticité importante durant les premiers mois d'évolution dans les calculs réalisés avec le code REM. Ce protactinium est ensuite réinjecté dans le cœur après un temps de séjour correspondant à cinq fois la demi-vie du ^{233}Pa puis séparation de l'uranium produit [89]. D'autre part, l'uranium, le neptunium et le plutonium produits dans la couverture sont extraits avec une pseudo-période de 6 mois correspondant à une extraction et au traitement de 40 l/d de sel.

Les actinides étant immédiatement réinjectés dans le cœur après leur extraction, ce schéma est qualifié de schéma **avec réinjection**. Cela se traduit par la couleur blanche des cases correspondant aux actinides concernés dans le tableau 4.7.

1 H Hydrogène	Extraction chimique (450 jours 50 ans)																2 He Hélium						
3 Li Lithium	4 Be Béryllium	Extraction des transthoriens (450 jours 6 mois)																5 B Bore	6 C Carbone	7 N Azote	8 O Oxygène	9 F Fluor	10 Ne Néon
11 Na Sodium	12 Mg Magnésium	Bullage gazeux et insolubles (43 s 43 s)																13 Al Aluminium	14 Si Silicium	15 P Phosphore	16 S Soufre	17 Cl Chlore	18 Ar Argon
19 K Potassium	20 Ca Canardium	21 Sc Scandium	22 Ti Titane	23 V Vanadium	24 Cr Chrome	25 Mn Manganèse	26 Fe Fer	27 Co Cobalt	28 Ni Nickel	29 Cu Cuivre	30 Zn Zinc	31 Ga Gallium	32 Ge Germanium	33 As Arsenic	34 Se Sélénium	35 Br Brome	36 Kr Krypton						
37 Rb Rubidium	38 Sr Strontidium	39 Y Yttrium	40 Zr Zirconium	41 Nb Niobum	42 Mo Molybdène	43 Tc Technétium	44 Ru Ruthénium	45 Rh Rhodium	46 Pd Palladium	47 Ag Argent	48 Cd Cadmium	49 In Indium	50 Sn Étain	51 Sb Antimoine	52 Te Tellure	53 I Iode	54 Xe Xénon						
55 Cs Césium	56 Ba Baryum	Ln Lanthanides		72 Hf Hafnium	73 Ta Tantale	74 W Tungstène	75 Re Rhenium	76 Os Osmium	77 Ir Iridium	78 Pt Platine	79 Au Or	80 Hg Mercure	81 Tl Thallium	82 Pb Plomb	83 Bi Bismuth	84 Po Polonium	85 At Astate	86 Rn Radon					
87 Fr Francium	88 Ra Radium	An Actinides		104 Rf Rutherfordium	105 Db Dubnium	106 Sg Seaborgium	107 Bh Bohrium	108 Hs Hassium	109 Mt Meitnérium	110 Ds Darmstadtium	111 Rg Roentgenium	112 Cn Copernicium	113 Nh Nihonium	114 Fl Flerovium	115 Mc Moscovium	116 Lv Livermorium	117 Ts Tennessé	118 Og Oganesson					
57 La Lanthane	58 Ce Cérium	59 Pr Praséodyme	60 Nd Néodyme	61 Pm Prométhium	62 Sm Samarium	63 Eu Europium	64 Gd Gadolinium	65 Tb Terbium	66 Dy Dysprosium	67 Ho Holmium	68 Er Erbium	69 Tm Thulium	70 Yb Ytterbium	71 Lu Lutécium									
89 Ac Actinium	90 Th Thorium	91 Pa Protactinium	92 U Uranium	93 Np Neptunium	94 Pu Plutonium	95 Am Americium	96 Cm Curium	97 Bk Berkélium	98 Cf Californium	99 Es Einsteinium	100 Fm Fermium	101 Md Mendélévium	102 No Nobelium	103 Lr Lawrencium									

TABLEAU 4.7 – Schéma d'extraction EVOL pour le cœur (gauche) et la couverture (droite)

Le schéma d'alimentation du MSFR de référence, présenté dans le tableau 4.8, est composé de trois alimentations et donc de trois contrôles corrélés [89]. Deux alimentations sont réalisées dans le cœur (♥) : une alimentation en ^{233}U pour maintenir la réactivité et une alimentation en ^{232}Th fertile pour garantir la surgénération. Il est à noter que ce schéma concerne les deux versions du MSFR présentées dans cette section, dont la version démarrée à l' ^{enr}U : le MSFR est conçu pour être surgénérateur mais malgré cela, les premières productions d' ^{233}U prennent un peu de temps du fait du temps de décroissance du ^{233}Pa et d'extraction de l'uranium. Cependant, l'hypothèse a été faite durant les études esquissant ces réacteurs qu'un peu d' ^{233}U était disponible pour assurer l'alimentation initiale [1]. Deux contrôles sur le sel combustible et leurs contraintes associées sont réalisés : il s'agit du maintien du k_{eff} à 0,9983 ainsi que le maintien de la fraction d'actinides à 22,5 % $_{\text{mol}}$ afin de respecter les proportions du sel au point eutectique 77,5 LiF – 22,5 AnF₄. Enfin, une alimentation en ^{232}Th est réalisée dans la couverture fertile (♻️) pour garantir la surgénération tout en veillant à conserver également une fraction d'actinides à 22,5 % $_{\text{mol}}$.

Cellule	Alimentation	Contrainte	Cible
Cœur	^{233}U	k_{eff}	0,9983
Cœur	^{232}Th	$f_{\text{An}}^{\heartsuit}$	22,5 % $_{\text{mol}}$
Couverture	^{232}Th	$f_{\text{An}}^{\♻️}$	22,5 % $_{\text{mol}}$

TABLEAU 4.8 – Alimentations et contraintes dans le MSFR

La figure 4.6 permet de visualiser l'impact de chaque alimentation sur chaque contrôle. Il est notamment possible de remarquer que l'ajout d' ^{233}U a un effet positif sur l'évolution du k_{eff} au contraire de l'alimentation en ^{232}Th dans le cœur et dans la couverture — le k_{eff} étant une grandeur globale dépendant de toute la géométrie du réacteur. La fraction d'actinide dans une des deux cellules est quasi indépendante des alimentations de l'autre cellule. La valeur n'est en revanche pas strictement nulle à cause d'effets numériques tels que les erreurs d'arrondi.

4.2.3.3 Impact du nouveau schéma de calcul sur le MSFR de référence

Les nouveaux développements effectués dans les codes ERE et REM ont abouti à une meilleure stabilité des alimentations. Durant ceux-ci, des simulations régulières du *benchmark* EVOL démarré à l' ^{235}U ont été réalisées afin de suivre le comportement du code et s'assurer que les développements réalisés en son sein ne changeaient pas fondamentalement les résultats.

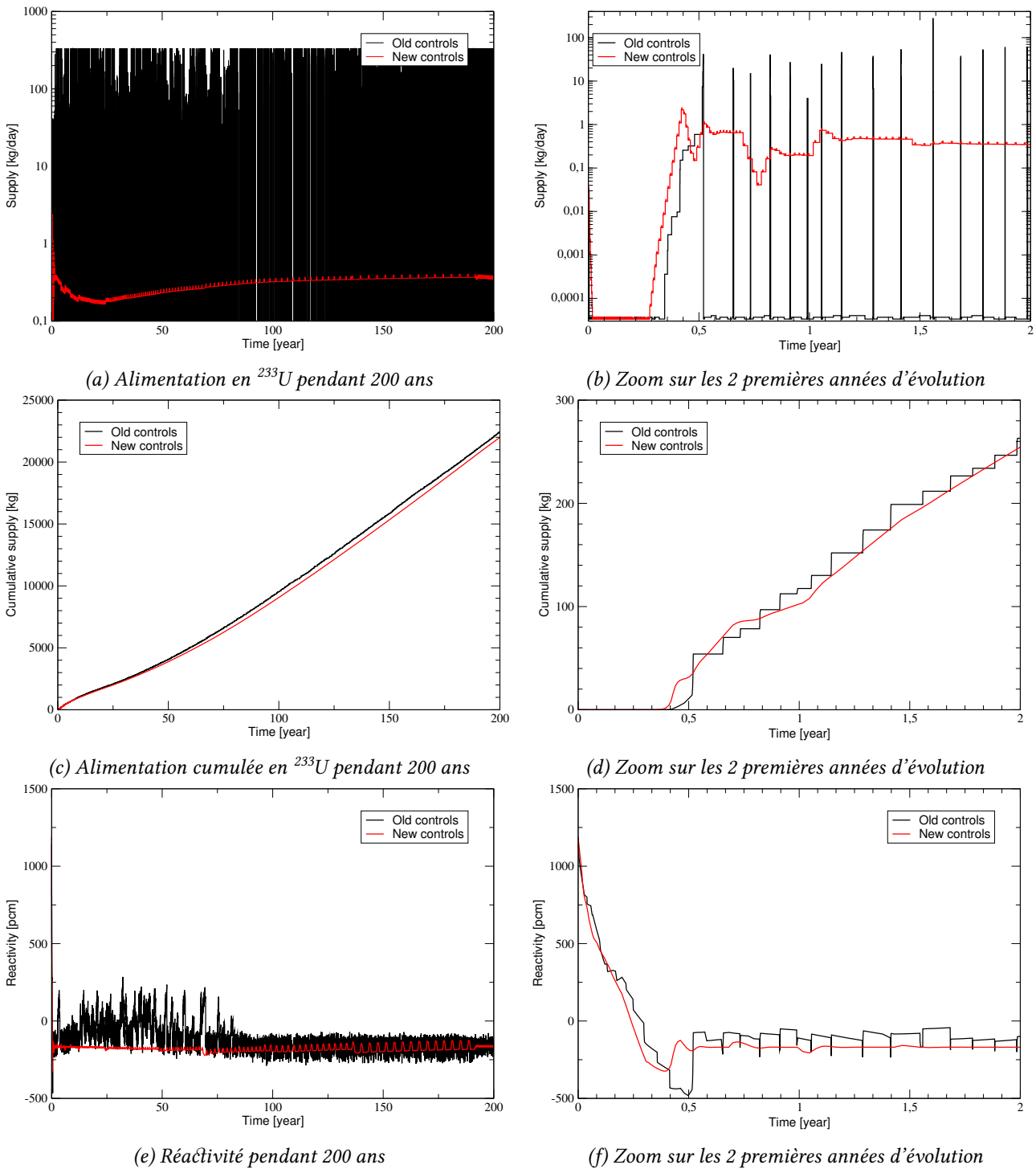


FIGURE 4.7 – Alimentation instantanée et cumulée en ^{233}U et réactivité dans le cœur du MSFR [143, 144]

La figure 4.7 montre l'alimentation instantanée et cumulée en ^{233}U dans le cœur du MSFR de référence ainsi que le k_{eff} durant une évolution de 200 ans. Les tracés en noir sont les valeurs calculées avec l'ancienne méthode de calcul des alimentations présentée dans la section 3.3.2.4 tandis que les tracés en rouge sont calculés avec la nouvelle méthode présentée dans la section 4.2.2.2. Chaque figure à droite est un zoom sur les 2 premières années d'évolution de la figure à gauche.

Les deux courbes de la figure 4.7a sont radicalement différentes : la figure 4.7b permet de voir que l'ancien modèle fournissait une alimentation par à-coups irréguliers tandis que le nouveau modèle montre une alimentation continue et lissée bien plus stable. Il est à noter que les petits pics présents sur la courbe rouge de la figure 4.7b sont les petites variations d'alimentation utilisées pour calculer les dérivées de la colonne idoine de la matrice jacobienne comme l'illustre la figure 4.5 page 117.

Malgré un comportement différent, le nouveau modèle d'alimentation ne dérive que très peu par rapport à l'ancien. La figure 4.7c montrant l'intégrale des alimentations de la figure 4.7a renseigne qu'au bout de 200 ans d'évolution, la masse d' ^{233}U alimentée en cœur n'a changé que d'environ 2 %_{mass}, passant de 22,419 à 21,974 tonnes. Cet effet était attendu de par l'irrégularité des pics d'alimentation tels que ceux visibles dans la figure 4.7b : leur emplacement pouvant changer d'une simulation à une autre, il n'y avait aucune raison à ce que leur intégrale évolue grandement. La figure 4.7d permet quant à elle d'appréhender le caractère lissant de la nouvelle gestion des alimentations par rapport à l'ancien modèle.

La plus grande stabilité des alimentations se transmet dans le comportement des contraintes qu'elles contrôlent. Les figures 4.7e et 4.7f l'illustrent en montrant que le k_{eff} oscille beaucoup moins avec le nouveau modèle et dévie beaucoup moins de la cible. Cette stabilité améliorée des contraintes permet d'envisager l'augmentation de leur nombre et donc du nombre d'alimentations associées, passant de 3 pour le MSFR de référence à 8 dans certains concepts présentés dans le chapitre 5.

💡 À retenir (4.2)

L'étude de petits réacteurs à sels fondus incinérateurs a, dans le passé, conduit à observer des comportements instables de la part du code REM. Un travail d'exploration des codes sources a permis, outre de mieux comprendre son fonctionnement, d'améliorer la stabilité du modèle via le développement d'un nouveau calcul pour les alimentations d'une part et, d'autre part, d'ajouter de nouvelles contraintes sur le sel pour explorer de nouveaux aspects physico-chimiques inhérents aux petits incinérateurs.

4.3 Outils d'analyse poussée

Au cours de ce travail de thèse, différents scripts et codes ont été écrits afin d'améliorer la productivité, les représentations logiques et l'analyse poussée des résultats des différentes simulations effectuées. Tous ces développements ont été réalisés dans l'environnement Python appelé CANARENT (Codes d'Aides aux Nanotasks Abrutissantes, Rébarbatives et Ennuyeuses mais Nécessaires pour le Travail). Un *focus* est réalisé sur l'interface REMGui, section 4.3.1. La section 4.3.2 présente également la mouture personnalisée du constructeur de géométrie et la section 4.3.3 présente un combiné de ces codes avec une méthodologie simplifiée de la modélisation d'un réacteur.

4.3.1 Relecture et interface graphique automatisées

4.3.1.1 Relecture des simulations REM

Le code REM, durant son exécution, produit au fur et à mesure de l'avancement des pas MCNP des fichiers binaires contenant les compositions des différents inventaires de matériaux. En outre, les grandeurs neutroniques d'intérêt sont prises dans les fichiers de sortie de MCNP, qui font ainsi partie intégrante des fichiers de résultats de REM. Il existe un module intégré à REM, appelé la **relecture** et permettant de relire les résultats répartis parmi les fichiers binaires ou de sortie de MCNP pour les compiler dans des fichiers textes plus pratiques à manipuler [153, Annexe C]. Cette relecture permet de générer des fichiers divers tels que :

- la masse (en kg) d'un isotope dans une cellule précise en fonction du temps ;
- la quantité (en mol) de ce même isotope ;
- la masse ou la quantité d'un élément (la somme de ces isotopes) ;
- la masse ou la quantité de tous les éléments d'une cellule ou d'un mode ;
- la masse ou la quantité des éléments extraits par pseudo-décroissance (voir section 3.3.1.1) ;
- le débit d'alimentation (en kg/d ou en mol/d) d'un isotope ou d'un élément dans une cellule ;
- la section efficace d'une réaction sur un isotope ;
- le taux de réaction associé (en kg/d ou en mol/d) ;
- la valence des éléments dans une cellule ;
- le volume ionique d'une cellule ;
- la composition isotopique (en cm^{-3}) d'une cellule ou d'un groupe de cellules à un moment donné du calcul d'évolution, appelée **procédure**.

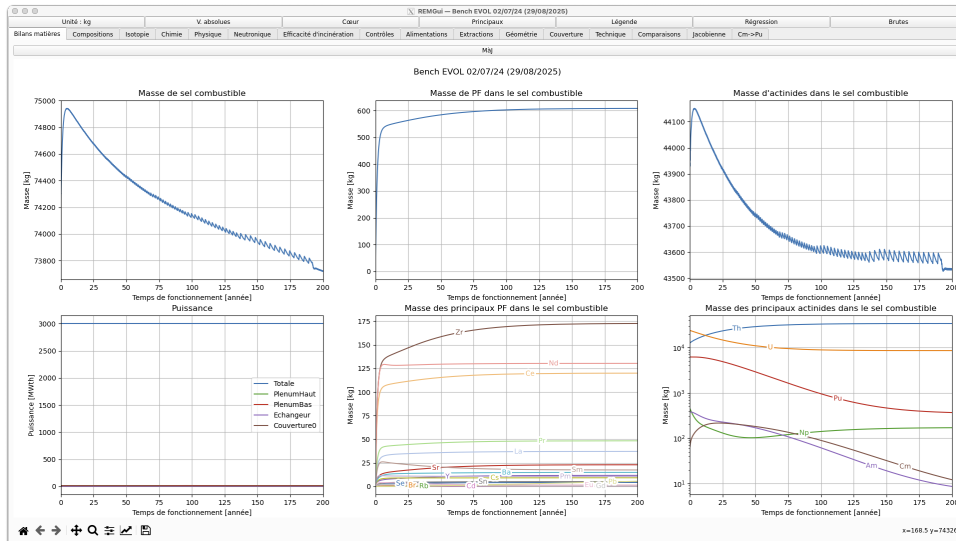
Pour réaliser cette relecture, le code REM reproduit l'évolution mais, puisque les fichiers binaires et les fichiers MCNP existent déjà, *shunte* les modules correspondants pour se contenter de relire ces fichiers. Ainsi, le temps d'exécution de la relecture est directement proportionnel au nombre d'observables demandées. Ce processus peut ainsi prendre plusieurs heures en cas de relecture d'un grand nombre d'isotopes : un module de parallélisation a été écrit en Python afin de répartir cette tâche sur tous les processeurs disponibles sur le serveur de calculs utilisé (voir section 3.5.1) réduisant le temps d'exécution à quelques minutes en moyenne, dans une fourchette comprise entre 40 secondes et 20 minutes.

4.3.1.2 Interface graphique REMGui

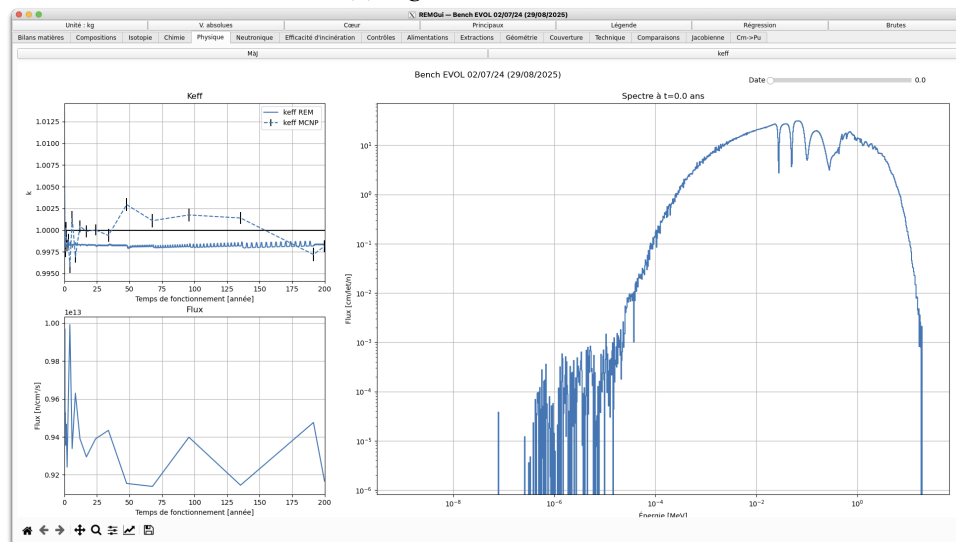
La liste des différentes observables à relire à partir d'une simulation REM dépend de plusieurs facteurs comme par exemple la géométrie du réacteur, la composition du sel ou s'il s'agit d'un chlorure ou d'un fluorure. De plus, certaines observables comme les critères d'incinération présentés dans la section 4.1.2 demandent à faire des calculs sur les observables disponibles avec le module de relecture de REM. Enfin, il est nécessaire d'avoir un moyen rapide d'afficher ces observables. C'est avec ces objectifs que le code REMGui (*REM simulation results Graphical User Interface*) a été développé durant ces travaux de thèse.

Ce code, écrit dans le langage Python au sein de l'environnement CANARENT, est composé de plusieurs modules fonctionnant ainsi :

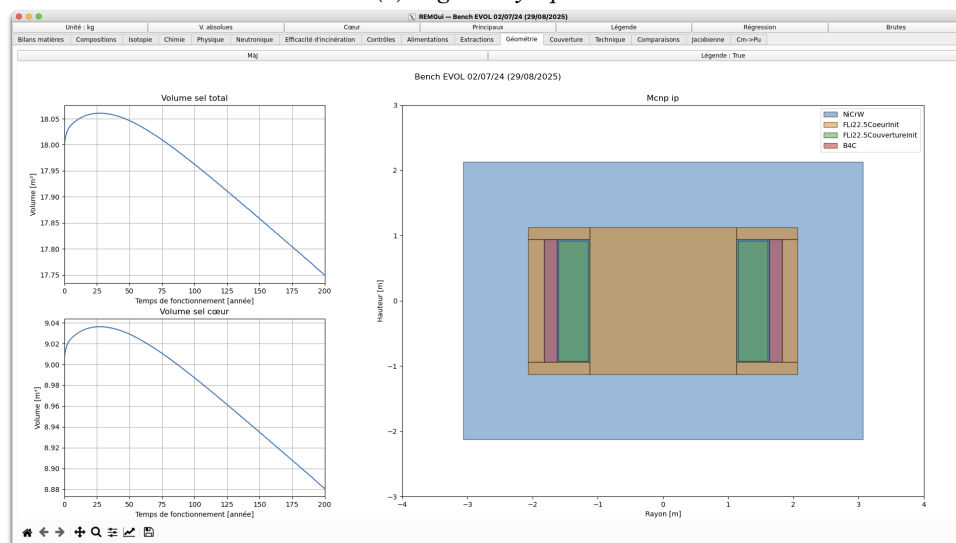
- 1^e) Une première extraction des données, dite rapide, récupère les informations utiles à la relecture dans tous les fichiers textes de la simulation REM. Ces informations sont par exemple le nom de la simulation, la géométrie du réacteur avec la composition initiale de tous les matériaux et le volume de toutes les cellules, la puissance du réacteur et différents paramètres de la simulation comme le temps total t_{fin} ou encore le ^{242}BR utilisé. Cette extraction rapide permet également de connaître les temps des différents pas MCNP avec les k_{eff} calculés ainsi que les différents χ^2 associés à ces pas de temps. Ce module peut être appelé pendant l'exécution de REM afin d'avoir un suivi du k_{eff} en temps réel.
- 2^e) Une seconde extraction des données est ensuite réalisée avec la relecture REM parallélisée sur toutes les observables jugées intéressantes. Une relecture des sorties de MCNP est également réalisée afin d'extraire les spectres aux différents pas MCNP, s'ils ont été demandés avant l'exécution de REM.



(a) Page « Bilans matière »



(b) Page « Physique »



(c) Page « Géométrie »

FIGURE 4.8 – Quelques pages de l'interface REMGui avec le MSFR de référence pour illustration

- 3^e) Une opération de mise en forme des données, appelée dans le code *shaping*, est ensuite réalisée afin de calculer toutes les grandeurs qui seront affichées par le dernier module. Ces grandeurs sont, par exemple, la puissance produite dans chaque cellule, les différents vecteurs isotopiques (*e. g.* la proportion massique et molaire de ^{239}Pu dans le plutonium), la densité du sel, le flux, les taux de réactions en atome par seconde et les critères d'incinération.
- 4^e) Enfin, un module d'affichage graphique écrit avec le module PyQt6 organise ces grandeurs dans différentes pages dont quelques exemples sont présents dans la figure 4.8 montrant le MSFR de référence. Ces pages montrent des bilans matières généraux (figure 4.8a), la composition du sel, les différents vecteurs isotopiques, des considérations chimiques comme la position du sel sur le diagramme ternaire, les k_{eff} , le flux et le spectre (figure 4.8b), les sections efficaces et taux de réaction, les différents critères d'incinération, les contrôles, les alimentations, les extractions et la géométrie du réacteur (figure 4.8c).

4.3.2 Construction automatisée de la géométrie

4.3.2.1 Adaptation de la géométrie pour la neutronique

La géométrie produite par les différents codes constructeurs (voir sections 3.5.3 et 4.3.2) est composée de plusieurs cylindres creux imbriqués les uns dans les autres. La figure 4.9 montre à gauche une coupe d'un seizième de la géométrie simplifiée utilisée dans les simulations neutroniques du circuit combustible du MSFR tandis qu'à droite se trouve ce même seizième mais de la géométrie optimisée pour les calculs thermohydrauliques [24].

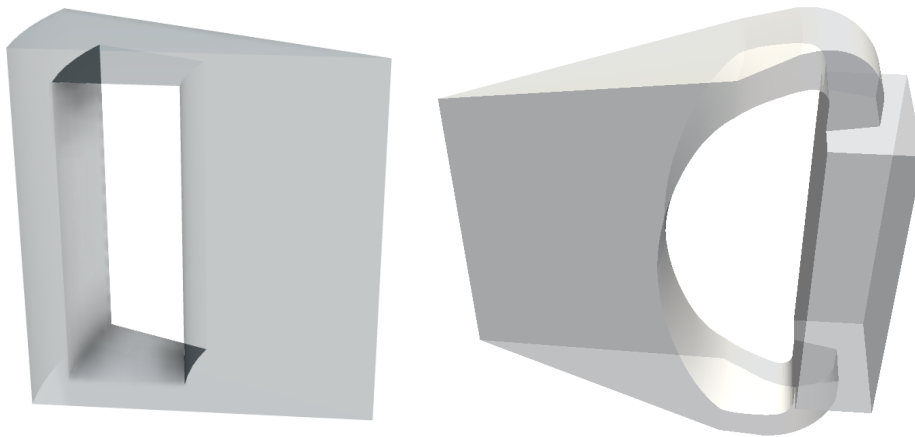


FIGURE 4.9 – 1/16^e du circuit combustible du MSFR optimisé pour la thermohydraulique (à droite) [24] et utilisé pour les études neutroniques (à gauche)

La géométrie utilisée pour les calculs neutroniques est simplifiée de par la faible sensibilité de la neutronique à la géométrie fine [89]. En revanche, les calculs d'évolution sont sensibles aux volumes des différentes cellules. Le tableau 4.9 compare quelques grandeurs neutroniques pour différentes géométries simplifiées du MSFR de référence démarré à l' $^{\text{enr}}\text{U}$:

- la géométrie « Référence, » visible notamment dans la figure 4.8c ;
- une géométrie « Cœur et couverture » dans laquelle ne subsiste que la cellule orthocylindrique du cœur ainsi que la couverture fertile autour, le tout dans un réflecteur en NiCrW ;
- une géométrie « Cœur » composée uniquement du cœur dans le réflecteur.

La différence entre les grandeurs neutroniques statiques dans le cœur est minimale, donc quasi identique au démarrage du réacteur ($t = 0$). Mais la réduction du volume du sel combustible de moitié dans les deux géométries alternatives entraîne une diminution de moitié des inventaires initiaux : ainsi, $N_{^{232}\text{Th}}(t = 0)$ est divisé par deux. Cela a une forte conséquence dans la résolution des équations de Bateman.

Grandeur	Référence	Cœur et couverture	Écart	Cœur	Écart
$k_{\text{eff}} \pm \text{std dev}$	$1,01300 \pm 0,00071$	$1,01211 \pm 0,00068$	0,088 %	$1,01313 \pm 0,00065$	-0,00013 %
$\langle \sigma_{\text{c}, {}^{232}\text{Th}} \phi \rangle$ [mol/d]	$5,08866 \pm 0,00659$	$5,08264 \pm 0,00610$	0,12 %	$5,08800 \pm 0,00611$	0,013 %
$\langle \sigma_{\text{f}, {}^{235}\text{U}} \phi \rangle$ [mol/d]	$5,52122 \pm 0,00605$	$5,51656 \pm 0,00607$	0,084 %	$5,52110 \pm 0,00607$	0,0023 %

TABLEAU 4.9 – Comparaison de grandeurs neutroniques en cœur entre différentes géométries simplifiées du MSFR de référence

L'inertie des inventaires n'est donc pas respectée, ce qui justifie la modélisation de tout le circuit combustible avec les bons volumes. Cet effet est également perçu dans la section 5.2.3.2. Cependant, cette hypothèse n'est pas réalisée pour la modélisation de la couverture fertile, bien que le problème demeure également : seule la couverture est modélisée sans le circuit idoine comprenant les systèmes d'extraction des matières fissiles et d'évacuation de la chaleur, mais ces circuits externes devraient avoir un faible volume en comparaison.

4.3.2.2 Constructeur de géométrie CARAPTOR

La section 3.5.3 présente le principe de fonctionnement des constructeurs de géométrie pour le code REM. Le Constructeur Avancé de RAPTOR (**CARAPTOR**), écrit dans le langage Java, est une version du constructeur existant pour REM adapté aux réacteurs étudiés dans cette thèse, dont la géométrie est appelée « type RAPTOR » dans le cadre de ce travail. Cette géométrie possède deux conventions selon le placement des plénums, les cellules reliant le cœur avec les échangeurs de chaleur (HX). La figure 4.10 montre la géométrie type RAPTOR avec les deux conventions : le plénum court à gauche dans laquelle la hauteur des HX est la même que celle du cœur et le plénum long à droite dans laquelle la hauteur des HX est la même que ceux des anneaux présents entre ceux-ci et le cœur.

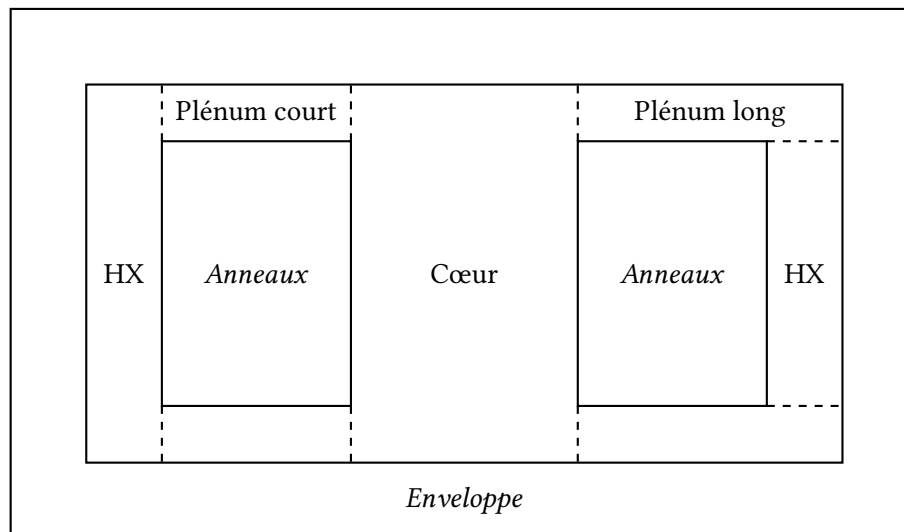


FIGURE 4.10 – Conventions « plénum court » à gauche et « plénum long » à droite

Le circuit combustible, dans lequel le sel est présent, correspond ainsi au groupe constitué du cœur, des plénums haut et bas et des HX. L'enveloppe — pouvant être constituée de plusieurs couches — correspond aux matériaux de structure de la cuve et les anneaux sont des cellules cylindriques concentriques autour du cœur. La figure 4.8c présente à titre d'illustration la géométrie du MSFR de référence : celle-ci possède deux anneaux, une couverture fertile (en vert entourée de bleu) et une protection en B_4C (en rouge). Ce constructeur permet de construire une géométrie à partir d'une liste réduite de mots-clés et de grandeurs dont voici les principaux :

- le volume de sel total;
- la fraction de sel en cœur (et donc, indirectement, le volume du cœur);
- le facteur d'élanement du cœur;
- la fraction de sel dans les HX **ou** la hauteur des plénums;
- la convention utilisée pour les plénums, courts ou longs;
- la composition et la température du sel;
- pour chaque anneau :
 - sa position (plus ou moins proche du cœur);
 - son épaisseur;
 - son type (s'il s'agit d'une cellule unique ou de plusieurs cellules comme une couverture et sa cuve);
 - sa composition et la température du matériau le composant;
- pour chaque enveloppe :
 - sa position (plus ou moins proche du circuit combustible);
 - son épaisseur;
 - sa composition et la température du matériau la composant.

Enfin, il est à noter que le renseignement de la fraction de sel dans les HX et de la hauteur des plénums sont mutuellement exclusifs : avec la connaissance de l'une des deux grandeurs, il est possible de calculer l'ensemble des données géométriques restantes — dont l'autre grandeur. Les réacteurs décrits dans les chapitres suivants le seront via cette liste de grandeurs étant donnée la possibilité de calculer toutes les cotes avec celles-ci, voir le calcul explicité dans l'interlude 4.4.

⊕ Interlude 4.4 : Calcul des cotes d'un réacteur

Soit un réacteur de type RAPTOR avec un cœur de volume V_c , de hauteur H et de rayon r , des plénums de volume V_p et de hauteur h et des HX de volume V_{hx} et de rayon intérieur $p = r + e$ où e est l'épaisseur du réflecteur, de la couverture s'il y en a une et de la protection entre le cœur et l'HX. La figure 4.11 représente cette géométrie avec les cotes, celles munies d'une astérisque étant les dimensions connues avant le calcul [105, Annexe B].

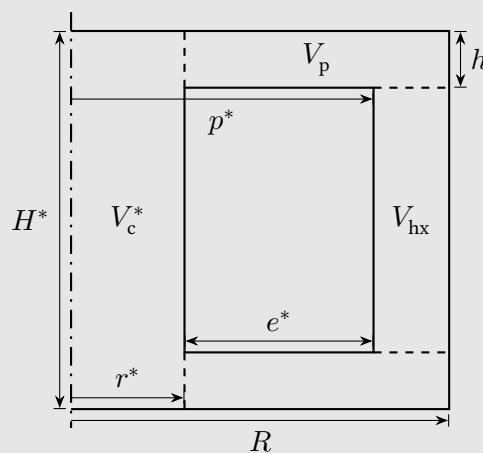


FIGURE 4.11 – Cotes d'une géométrie type RAPTOR (coupe axiale)

Les calculs de h et de R peuvent être fastidieux dans le cas de plénums longs. Le CARAPTOR peut prendre en entrée soit la hauteur des plénums h soit leur volume V_p (via la fraction de sel présente dans les HX).

Volume du plénum La hauteur h se déduit avec la formule (4.46) :

$$h = \pi H(r^2 - p^2) - V_{\text{hx}} - V_p + \frac{\sqrt{(V_{\text{hx}} + V_p - \pi H(r^2 - p^2))^2 + \pi H(r^2 - p^2)V_p}}{4\pi H(r^2 - p^2)} \quad (4.46)$$

Et ainsi, le rayon R se calcule avec la formule (4.47) :

$$R = \sqrt{\frac{V_p + 2\pi r^2 h}{2\pi r^2 h}} \quad (4.47)$$

Hauteur du plénum Inversement, lorsque h est connu, le rayon R se calcule avec la formule (4.48) :

$$R = \sqrt{\frac{V_{\text{total}} - V_c + 2\pi r^2 h + \pi p^2 (H - 2h)}{\pi H}} \quad (4.48)$$

Et ainsi, le volume V_p se déduit avec la formule (4.49) :

$$V_p = 2\pi h(R^2 - r^2) \quad (4.49)$$

4.3.2.3 Digression sur l'estimation du k_{eff} par le module IME

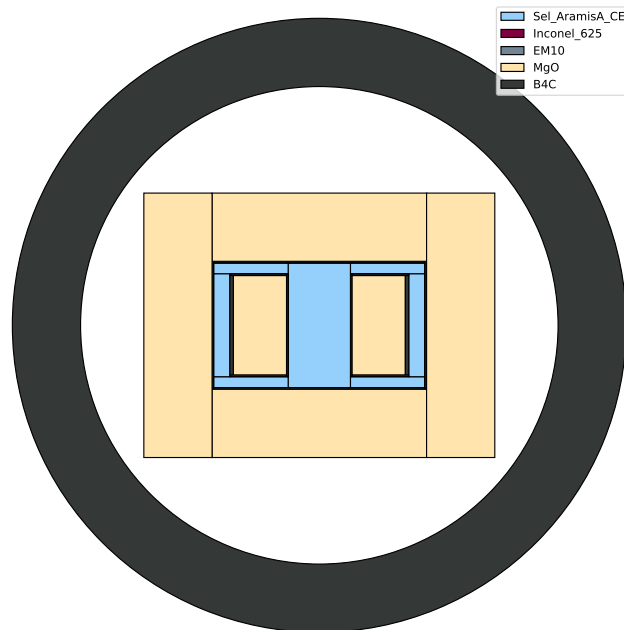


FIGURE 4.12 – Réacteur avec une boule de B_4C autour

Il existe dans les options de configuration du code REM (voir annexe C - 2) une option pour négliger le terme de fuites dans l'estimation du k_{eff} par le module IME. Ce k_{eff} , calculé à chaque pas d'intégration, est présenté dans l'équation (3.26) dans la section 3.3.2.4 : il sert à la fois de contrôle de la réactivité mais aussi pour la longueur des pas d'intégration (voir section 3.3.2.5). Bien qu'il existe un estimateur des fuites propre à IME, les simulations réalisées dans le cadre de cette thèse ne supposent aucune fuite de neutron de la géométrie simulée. Mais la simulation MCNP de réacteurs utilisant des réflecteurs dans des matériaux tels que le MgO (voir section 5.2.3.1) fait que des neutrons peuvent s'échapper de manière non négligeable de la géométrie : ainsi, MCNP prend en compte des fuites de neutrons — de l'ordre du pcm à la centaine de pcm — du

système tandis qu'IME fait l'hypothèse de ne pas les prendre en compte. Cette différence dans les hypothèses peut se répercuter dans la différence entre le k_{eff} calculé par MCNP et celui estimé par IME : dans certaines simulations, cet écart a pu être de 4000 pcm. Pour contrer cela, une boule de B_4C d'un mètre d'épaisseur, modélisant l'environnement du réacteur, est simulée autour de celui-ci. Cette valeur a été déterminée pour réduire à zéro le nombre de neutrons fuyants et ainsi rapprocher les deux estimateurs. La figure 4.12 montre une illustration de la géométrie d'un réacteur entourée de cette boule. Sauf mention explicite du contraire, cette boule de B_4C d'un mètre d'épaisseur est présente dans les simulations sans être représentée dans les visualisations de géométrie.

4.3.3 Méthodologie de modélisation d'un réacteur

Une fois tous les outils pris en main, la modélisation d'un réacteur peut se schématiser avec la figure 4.13.

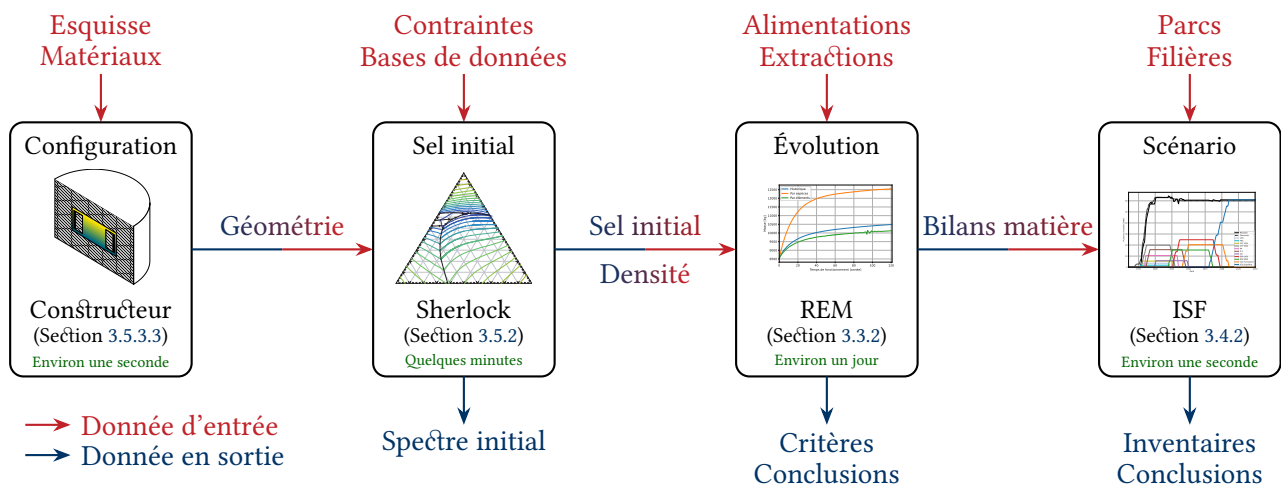


FIGURE 4.13 – Méthodologie de modélisation d'un réacteur

- 1^e) À partir d'une esquisse, décrite avec quelques mots-clefs, et des matériaux, une configuration est construite en à peine une seconde avec le constructeur de géométrie décrit dans les sections 3.5.3.3 et 4.3.2. Cette configuration permet d'avoir une géométrie du réacteur.
- 2^e) La deuxième étape consiste à déterminer la composition initiale du sel en respectant certaines contraintes comme par exemple rester sur l'eutectique. Elle est trouvée en quelques minutes avec l'algorithme Sherlock présenté dans la section 3.5.2 avec les bonnes bases de données renseignées. Ce sel initial permet d'avoir le spectre du réacteur étudié, permettant à ce stade une première idée du comportement du réacteur. Mais plus important, cette composition initiale est accompagnée d'une densité initiale calculée avec l'un des modèles présentés dans la section 2.1.3.1.
- 3^e) L'étape suivante consiste à simuler le réacteur en évolution. Comme déjà détaillé, cela est réalisé avec le code REM, présenté dans les sections 3.3.2 et 4.2.2. En plus de la géométrie accompagnée de ses matériaux et des densités associées, il est nécessaire à ce stade de renseigner les différents contrôles sur le combustible avec les différentes stratégies d'alimentation associées ainsi que les différentes extractions définies dans les usines SUR, voir section 3.3.2.2. Ce calcul d'évolution dure de quelques heures à plusieurs jours en fonction des hypothèses de simulation (le temps de simulation, la longueur des premiers pas et le retraitement, notamment). Une fois l'évolution réalisée, avec l'aide notamment du code REMGui présenté dans la section 4.3.1, il est possible d'évaluer les bilans matières du concept, son comportement à travers les différents critères d'incinération présentés dans la section 4.1.2 et finalement, une première conclusion vis-à-vis des objectifs d'incinération fixés.

- 4^e) La dernière étape, enfin, est de tester la capacité du réacteur à répondre aux objectifs dans un parc composé de filières de réacteurs. Le code ISF, présenté dans la section 3.4.2, va ainsi prendre en entrée les bilans matières et d'entrées/sorties du réacteur pour permettre en quelques secondes de tirer des conclusions sur la capacité du réacteur à s'intégrer dans un parc.

Pour simplifier et optimiser ce travail, différents scripts Python ont été écrits dans l'environnement CANARENT afin, par exemple, d'afficher rapidement la géométrie ou le spectre d'un concept pour vérification, ou encore afin de lancer automatiquement l'algorithme Sherlock selon des contraintes prédéfinies. Tout cela traduit la méthodologie mise en place durant ce travail de thèse pour l'étude et la modélisation des réacteurs présentés dans le chapitre 5 et intégrés dans les scénarios présentés dans le chapitre 6.

💡 À retenir (4.3)

L'environnement CANARENT a permis le développement de plusieurs codes et scripts afin de mettre en œuvre une méthodologie claire pour la modélisation des réacteurs étudiés dans cette thèse. À partir de la description pragmatique des esquisses étudiées et des contraintes associés, un sel initial vient amorcer un calcul neutronique en évolution dont la relecture est dorénavant facilitée grâce au développement d'une interface graphique automatique. Cette méthodologie permet *in fine* de tester des hypothèses initiales sur un concept dans un scénario simulant un parc de réacteurs.

Conclusion du chapitre

Ce quatrième chapitre revient sur le travail réalisé sur les outils déjà existants pour la simulation et l'étude neutronique des RSF dans le but d'améliorer leur performance pour les RSF incinérateurs. Le code de calcul neutronique en évolution REM a reçu une révision profonde améliorant la stabilité des alimentations grâce à l'implémentation d'une méthode de calcul utilisant une matrice jacobienne représentant l'impact de chaque alimentation sur chaque contrôle sur le sel. Cette nouvelle méthode et la nouvelle stabilité inhérente ont permis l'ajout de nouvelles contraintes physicochimiques sur le sel, comme par exemple le contrôle de la fraction des alcalins, des alcalinoterreux, ou encore le contrôle du volume ionique ou de l'électroneutralité du sel. Outre les nouvelles contraintes, cette stabilité permet également de multiplier le nombre d'alimentations — et donc de contrôles — passant de 3 pour le MSFR de référence à 4, 5 ou plus dans les concepts présentés dans le chapitre 5. Enfin, de nouveaux critères de mesure de la performance d'incinération des concepts ont été développés comme par exemple l'estimation du nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération d'un isotope via la définition d'une chaîne d'incinération modélisée par une chaîne de Markov absorbante. L'ensemble des critères définis sont utilisés dans la suite de ce travail pour caractériser et comparer les différents concepts de RSF incinérateurs étudiés dans le chapitre 5 : que cela soit des réacteurs développés dans le cadre de projet ou alors des concepts originaux à ce travail de thèse. La bonne caractérisation de ces concepts — ainsi que la stabilité de leur alimentation grâce aux nouveaux développements — est essentielle pour les travaux présentés dans la suite de cette thèse.

III

Troisième partie
Évolutions, études et scénarios

5

Caractérisation et développements de RSF incinérateurs

Sommaire

<i>Introduction du chapitre</i>	137
5.1 RAPTOr, pour l'incinération des transuraniens	137
5.1.1 Présentation des concepts	137
5.1.2 Stratégies de gestion des RAPTOrs définies pour le projet MIMOSA	139
5.1.3 Évaluation des critères de performance	142
5.2 ARAMIS-A, pour l'incinération de l'américium	145
5.2.1 Huit versions d'ARAMIS-A	145
5.2.2 Les schémas de calcul ISAC	147
5.2.3 Comparaisons et sensibilités sur les esquisses ARAMIS-A	152
5.3 ARAMIS-B, une esquisse alternative du concept ARAMIS-A	156
5.3.1 Mise en contexte	157
5.3.2 Ajouter une couverture fertile à ARAMIS-A	157
5.3.3 Sensibilités autour d'ARAMIS-B	161
<i>Conclusion du chapitre</i>	164

Figures

5.1 Masse de sel combustible et somme molaire des valences pour différentes stratégies d'alimentation	141
5.2 Position des sels combustibles sur le diagramme ternaire pour différentes stratégies d'alimentation	141
5.3 Rendement d'incinération des actinides	142
5.4 Bilan de production de l'américium (à gauche) et du curium (à droite)	143
5.5 Bilan de production de l'américium (à gauche) et du curium (à droite)	144
5.6 Proportion de fission des actinides	144
5.7 Illustration du calcul des pseudopériodes d'extraction avec normalisation du volume	148
5.8 Illustration de l'erreur en fonction de p	149
5.9 Évolution de la réactivité en regard de la masse de ^{238}Pu et de ^{242}Cm avant correction	150
5.10 Somme molaire des valences et performance de consommation des AM pour différentes stratégies d'alimentation	151
5.11 Spectres des différents ARAMIS-A	153

5.12	Performance d'incinération et proportion de fission des différents ARAMIS-A	153
5.13	Bilan de production du curium et dégâts d'irradiation dans le réflecteur des différents ARAMIS-A	154
5.14	Rendement d'incinération et bilan de consommation des actinides des différents ARAMIS-A	155
5.15	Performance et nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération des amériums principaux des différents ARAMIS-A	156
5.16	Visualisation de la géométrie d'ARAMIS-B	158
5.17	k_{eff} en fonction de l'épaisseur de la couverture fertile pour deux versions d'ARAMIS-B	158
5.18	Visualisation de l'évolution de la matrice jacobienne d'ARAMIS-B	159
5.19	Puissance thermique dans les cellules d'ARAMIS-A et d'ARAMIS-B	160
5.20	Illustration du cycle de conversion du plutonium avec ARAMIS-B	160
5.21	Spéctres initiaux du cœur, de la couverture et du réflecteur radial pour deux configurations d'ARAMIS-B	161

Tableaux

5.1	Caractéristiques géométriques des RAPTOs	138
5.2	Paramètres REM de la simulation des différents RAPTOs	138
5.3	Caractéristiques des cas d'application du projet MIMOSA	139
5.4	Différentes stratégies d'alimentation et de contraintes définies pour les RAPTO 2 m ³	140
5.5	Tableau récapitulatif des quatre simulations intervertissant les puissances totales et spécifiques	142
5.6	Vecteur isotopique des deux plutoniums considérés (en % _{mol})	143
5.7	Tableau récapitulatif des bilans matières pour les géométries 2 m ³	145
5.8	Caractéristiques géométriques des différentes versions d'ARAMIS-A	146
5.9	Paramètres REM des différentes simulations d'ARAMIS-A	147
5.10	Schéma d'extraction ISAC	148
5.11	Proportion de sel traité par <i>batch</i> , pseudopériodes et erreur relative pour quelques réacteurs d'intérêt	149
5.12	Schémas d'alimentation et de contrainte des différents ARAMIS-A	151
5.13	Caractéristiques des différents réflecteurs étudiés dans cette section	152
5.14	Caractéristiques des différents réflecteurs étudiés dans cette section	155
5.15	Schéma d'alimentation et de contrainte d'ARAMIS-B	159
5.16	Performance d'incinération et masse de plutonium converti pour différents matériaux de réflecteur	161
5.17	Vecteur isotopique des plutoniums cible et produit (en % _{mol})	162
5.18	Performance d'incinération, masse de plutonium converti et qualité fissile du plutonium extrait pour différentes épaisseurs de la couverture	162
5.19	Performance d'incinération, masse de plutonium converti et qualité fissile du plutonium extrait pour différents temps d'extraction du plutonium	163

Introduction du chapitre

Trois familles de concepts sont étudiées dans ce chapitre, chacune ayant leur particularité et leurs objectifs. La section 5.1 présente les différentes moutures du concept RAPTOR. La simulation de ces réacteurs permet de se familiariser avec la physique des incinérateurs et de pousser les limites du code REM. Par ailleurs, les derniers développements permettent d'essayer plusieurs stratégies d'alimentation différentes dans des simulations RAPTORs, et ce grâce à la plus grande stabilité des alimentations et donc la possibilité d'en augmenter leur nombre. Ces tests ont été menés dans le cadre du projet MIMOSA qui décline plusieurs variantes de RAPTOR. La section 5.2 présente les différentes versions du réacteur ARAMIS-A développées au sein du projet ISAC. Le développement de l'esquisse du réacteur étant au centre du projet, l'étude de variations autour du concept principal est peu explorée *a contrario* du projet MIMOSA. Les travaux effectués dans ce cadre permettent la comparaison avec les codes des différents partenaires du projet sur la même base de données contraintes et d'une même esquisse. Ces travaux de comparaison permettent d'une part de mieux comprendre les résultats obtenus avec le code REM et, d'autre part, de quantifier l'impact d'un schéma d'extraction continu ou par *batch*, tous les codes testés n'ayant pas le même schéma de calcul. Enfin, la section 5.3 présente une esquisse alternative au concept ARAMIS-A posant les bases d'une stratégie de gestion du plutonium axée sur une relation symbiotique entre les REP moxés et des RSF convertisseurs de plutonium. Cette esquisse alternative introduit une couverture fertile autour du cœur d'ARAMIS-A qui convertit du plutonium provenant de combustibles MOX usés en plutonium ayant une qualité équivalente à celle de plutonium provenant de combustibles UNE usés et qui peut être ensuite utilisé pour fabriquer des combustibles REP MOX neufs.

5.1 RAPTOR, pour l'incinération des transuraniens

Le RAPTOR, présenté dans la section 2.4.2, est un réacteur incinérateur de transuraniens développé et étudié dans le cadre de la thèse de Laura Mesthiviers en partenariat entre le CNRS et le groupe Orano [27]. Celui-ci a servi de base pour différentes variantes utilisées dans le cadre du projet MIMOSA, présentées dans la section 5.1.1, et du développement du schéma de calcul MIMOSA expliqué dans la section 2.2.2.3 et présenté à la lumière des nouveaux développements dans le code REM dans la section 5.1.2. Enfin, quelques études de sensibilités sur les performances d'incinération de ces concepts sont présentées dans la section 5.1.3.

5.1.1 Présentation des concepts

5.1.1.1 Plusieurs géométries

L'esquisse de RAPTOR développée par Laura Mesthiviers est appelée « Historique » dans la suite de ce travail. Les configurations de RAPTOR considérées dans le projet MIMOSA remplissent plusieurs objectifs avec des dimensions et des puissances associées [106] :

- un réacteur démonstrateur de petite taille et de petite puissance (une dizaine de MW_e), avec un cœur de 0,5 m³ ;
- un AMR, optimisé pour l'incinération et proche du RAPTOR historique avec un cœur de 2 m³ et une puissance de quelques centaines de MW_e ;
- un réacteur de puissance, de l'ordre du GW_e, utilisant une géométrie similaire à celle du MSFR de référence (cœur de 9 m³) et servant de comparaison aux études précédentes utilisant des géométries plus complexes.

Il est à noter que, dans la suite de ce travail, ces versions de RAPTOR seront plutôt appelées par le volume de leur cœur. Le tableau 5.1 montre les caractéristiques géométriques de ces différentes variations ainsi que celles du RAPTOR historique. La composition de l'acier 316H se trouve dans l'annexe A - 2.

Version	Démonstrateur	Historique	AMR	Puissance
Référence	[106]	[27, 105]	[106]	[106]
Volume de sel total [m ³]	1	3,88	4	18
Volume du cœur [m ³]	0,5	1,94	2	9
Facteur d'élanement	1	1	1	1
Fraction de sel en cœur [%]	50	50	50	50
Fraction de sel dans les HX [%]	19,5	19,5	19,5	19,5
Épaisseur réflecteur [cm]	40	40,2	40	40
Matériau réflecteur	316 H	316 H	316 H	316 H
Densité réflecteur [g/cm ³]	8	8	8	8
Épaisseur protection [cm]	10	10	10	10
Matériau protection	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C
Densité protection [g/cm ³]	2,52	2,52	2,52	2,52

TABLEAU 5.1 – Caractéristiques géométriques des RAPTOrs

Le tableau 5.2 montre les paramètres utilisés dans les simulations REM des trois tailles de RAPTOr étudiées dans le cadre du projet MIMOSA. La version AMR — ou encore 2 m³ — est étudiée avec deux puissances spécifiques : 150 MW_{th}/m³ de sel en cœur, correspond à la valeur utilisée par le RAPTOr historique et 250 MW_{th}/m³, qui est aussi la valeur des différentes esquisses d'ARAMIS-A, voir section 5.2.1. Ces deux versions sont appelées respectivement « 2 m³ – 300 MW_{th} » et « 2 m³ – 500 MW_{th} ».

Version	0,5 m ³	2 m ³	9 m ³
Puissance thermique [MW _{th}]	10	300 et 500	1350
Puissance spécifique en cœur [MW _{th} /m ³]	20	150 et 250	150
Température sel [K]	800	800	800
Température structures [K]	800	800	800
Temps d'évolution [ans]	4	120	120
Δt_1 [d]	1	1	1
Cycles MCNP	400	400	400
<i>Dont inactifs</i>	50	50	50
n_{src}	2500	2500	2500

TABLEAU 5.2 – Paramètres REM de la simulation des différents RAPTOrs [106]

5.1.1.2 Différentes configurations dans le cadre du projet MIMOSA

Dans le cadre du projet MIMOSA, différents cas¹ d'application des RAPTOr 0,5 m³ et 2 m³ ont donc été définis [107]. Ces cas sont au nombre de huit et peuvent être regroupés selon plusieurs dichotomies :

1. Ces cas sont appelés « Scénarios » dans la littérature associée au projet [97], bien que cela n'en soit pas à proprement parler.

- d'un côté l'utilisation du sel ternaire $\text{NaCl}-\text{MgCl}_2-\text{PuCl}_3$ (cas 1 et 2) et de l'autre, le sel ternaire $\text{NaCl}-\text{ThCl}_4-\text{PuCl}_3$ (cas 3 et 4);
- d'un côté des démonstrateurs de $0,5 \text{ m}^3$ sans traitement ni alimentation et utilisant du Pu ex-UOX (cas 1 et 3) et de l'autre des AMR de $2 \text{ m}^3 - 300 \text{ MW}_{\text{th}}$ simulés avec le schéma de calcul présenté dans la section 5.1.2 et utilisant du Pu ex-MOX (cas 2 et 4);
- d'un côté l'utilisation du chlore enrichi à $99 \text{ \%}_{\text{mol}}$ (cas 1 et 3) et de l'autre du chlore naturel (versions *bis*);
- d'un côté l'alimentation avec du Pu ex-MOX (cas 2 et 4) et de l'autre avec du Pu+AM ex-MOX (versions *bis*).

Le tableau 5.3 compile les caractéristiques des huit cas étudiés.

Cas d'application	1	1 bis	2	2 bis	3	3 bis	4	4 bis
Sel ternaire	$\text{NaCl}-\text{MgCl}_2-\text{PuCl}_3$				$\text{NaCl}-\text{ThCl}_4-\text{PuCl}_3$			
Version RAPTOR	$0,5 \text{ m}^3$		$2 \text{ m}^3 - 300 \text{ MW}_{\text{th}}$		$0,5 \text{ m}^3$		$2 \text{ m}^3 - 300 \text{ MW}_{\text{th}}$	
Enrichissement en ^{37}Cl [% _{mol}]	99	24,23	99		99	24,23	99	
Schéma de traitement	Non		MIMOSA		Non		MIMOSA	
Plutonium	ex-UOX		ex-MOX		ex-UOX		ex-MOX	
Actinides mineurs	Non		Non	ex-MOX	Non		Non	ex-MOX

TABLEAU 5.3 – Caractéristiques des cas d'application du projet MIMOSA

Les résultats des simulations des cas 1, 1 bis, 3 et 3 bis ont été utilisés dans le cadre du WP5 du projet MIMOSA pour définir des procédés dans les usines de La Hague en fonction des flux de matières calculés avec le code REM [107] et ceux de la simulation du cas 2 l'ont été dans le cadre du WP6 pour évaluer quelles matières pouvaient être valorisables dans les produits de fission extraits d'un RAPTOR [108].

5.1.2 Stratégies de gestion des RAPTORs définies pour le projet MIMOSA

5.1.2.1 Schéma d'extraction MIMOSA, un schéma avec réinjection

Le schéma d'extraction développé dans le cadre du projet MIMOSA reprend les bases posées par le schéma développé par Hugo Pitois dans sa thèse [67] dans le cadre du projet SAMOSAFER. Il s'agit d'un schéma avec une réinjection immédiate des actinides via pyrochimie se traduisant par la non-extraction de ceux-ci dans la simulation numérique. Ce schéma est présenté dans le tableau 2.4 page 53 et plus largement dans la section 2.2.2.3.

5.1.2.2 Nouveaux schémas d'alimentation

Le schéma d'alimentation historique des RAPTORs est une traduction du schéma adopté pour le MSFR de référence. Ces alimentations simples, composées d'éléments voire d'isotopes seuls, sont associés à des contraintes corrélées : le k_{eff} et la fraction d'actinides dans le cas du MSFR. L'adaptation de ce schéma développé pour l'étude d'un réacteur surgénérateur à sels fluorures pour un réacteur incinérateur à sels chlorures avait donné lieu en première approche à un schéma d'alimentation simple : une seule alimentation composée du ou des actinides à incinérer et une seule contrainte associée, le k_{eff} . Mais les développements réalisés durant cette thèse au sein des codes REM et ERE (voir section 4.2.2) garantissant une meilleure stabilité des alimentations, et donc offrant la possibilité de multiplier leur nombre, de nouvelles possibilités ont émergé afin d'étoffer le schéma d'alimentation historique des RAPTORs.

Les réflexions sur le caractère réducteur ou oxydant du sel, son électroneutralité ainsi que la nécessité de rester proche de la ligne eutectique des sels ternaires pour des questions de sûreté (voir section 2.1.3) ont mené à l'ajout de nouvelles contraintes dans les simulations numériques (correspondant à une fraction de sodium constante, voir section 4.2.2.1). Mais dans la philosophie d'élaboration d'un schéma d'alimentation, il est nécessaire d'accorder le nombre d'alimentations et de contraintes. Ce travail peut se faire dans les deux sens : s'il apparaît un nombre de contraintes plus grand, il est nécessaire de rajouter des alimentations associées et inversement.

En parallèle, des réflexions ont été conduites sur la forme chimique que pouvaient prendre ces alimentations. En considérant un sel ternaire $\text{NaCl}-\text{MgCl}_2-\text{PuCl}_3$, il est possible de remarquer deux découpages différents :

- un découpage par espèces, prenant en compte NaCl , MgCl_2 puis PuCl_3 ;
- un découpage par éléments, prenant en compte le Na, le Mg, le Pu et enfin le Cl.

Cela introduit intuitivement trois ou quatre alimentations différentes en fonction de la stratégie considérée.

Ainsi est-il nécessaire de trouver trois ou quatre contraintes à associer à ces trois ou quatre alimentations. Le contrôle classique du k_{eff} est directement hérité de la stratégie historique. La nécessité de rester proche de la ligne eutectique peut se traduire en première approximation par un contrôle de la fraction de sodium – et donc d'alcalin : en effet, cette ligne eutectique est en grande partie horizontale dans le diagramme ternaire (voir figure 2.3 page 44). Enfin, le contrôle du volume du sel garantissant son maintien constant.

Le contrôle de l'électroneutralité peut être considéré dans le cas d'une stratégie d'alimentation par éléments, le chlore venant ajuster la somme des valences du sel. Le tableau 5.4 récapitule les trois stratégies d'alimentation et de contraintes utilisées pour les RAPTOR 2 m³.

Stratégie	Cellule	Alimentation	Contrainte	Cible
Historique	Cœur	Pu	k_{eff}	0,9983
Par espèces	Cœur	PuCl_3	k_{eff}	0,9983
	Cœur	NaCl	f_A^\heartsuit	Initiale
	Cœur	MgCl_2	V^\heartsuit	Initial
Par éléments	Cœur	Pu	k_{eff}	0,9983
	Cœur	Na	f_A^\heartsuit	Initiale
	Cœur	Mg	V^\heartsuit	Initial
	Cœur	Cl	Électroneutralité	

TABLEAU 5.4 – Différentes stratégies d'alimentation et de contraintes définies pour les RAPTOR 2 m³

Étant donnée la présence nouvelle de Na, Mg et Cl dans les alimentations, une mise à jour alternative du schéma de traitement MIMOSA doit être faite pour extraire ces trois éléments afin de laisser suffisamment de marge aux alimentations pour ajuster les différentes contraintes considérées. Cette mise à jour est rappelée dans le tableau 2.4 (section 2.2.2.3) avec les éléments hachurés montrant ces nouveaux éléments extraits.

La figure 5.1 montre à gauche la masse de sel combustible et à droite la somme de toutes les valences dans le sel au cours de l'évolution et pour les trois stratégies d'alimentation. Il est possible de remarquer que la somme des valences devient rapidement positive dans le cas de la stratégie historique (en bleu) : en effet, la seule alimentation de plutonium introduit des éléments de valence +3 dans le sel et l'extraction des PF résultants ne compense pas cette augmentation de la valence. Cet effet est exacerbé dans le cas de la stratégie

par espèces (en orange) avec une augmentation de 569 % à la fin de l'évolution. Cela peut s'interpréter par une lacune en chlore dans le sel, ce qui conduit à rendre le sel fortement réducteur. Cette lacune est en revanche comblée dans le cas de la stratégie par éléments (en vert) puisque l'alimentation en chlore seul vient corriger l'électroneutralité.

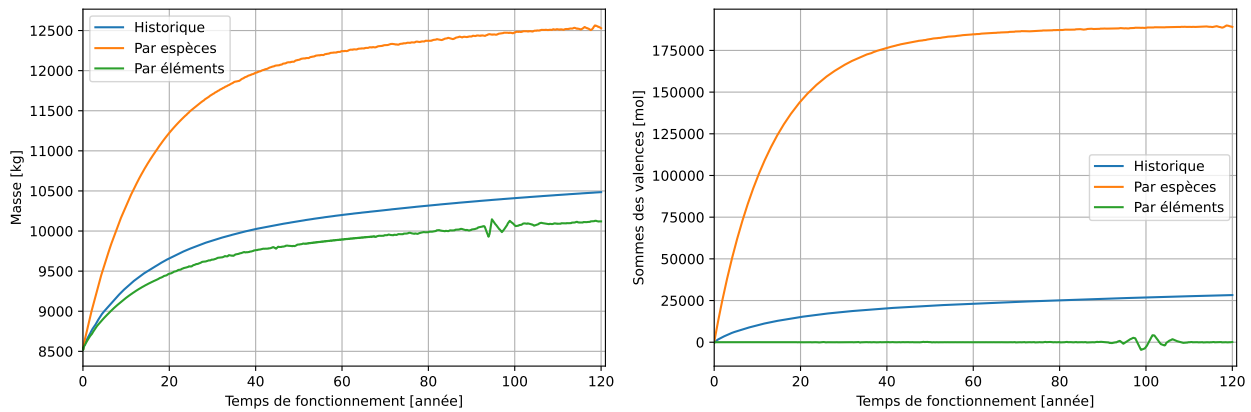


FIGURE 5.1 – Masse de sel combustible (à gauche) et somme molaire des valences (à droite) pour différentes stratégies d'alimentation

La figure 5.1 renseigne également que la stratégie par espèces surévalue la masse de sel combustible avec un écart de 19,5 %_{mass} par rapport à la stratégie historique en fin d'évolution tandis que la stratégie par éléments finit avec un écart de -3,5 %_{mass}, ce qui la rapproche de la stratégie historique. Enfin, la figure 5.2 montre la position des sels combustibles sur le diagramme ternaire et plusieurs remarques peuvent être faites :

- la stratégie historique dévie fortement de la position du sel initial en étant logiquement « attirée » vers le coin du PuCl_3 ;
- la stratégie par espèces semble rester sur place ;
- la stratégie par éléments s'éloigne de la position initiale tout en suivant la ligne eutectique (et en restant dans les zones B et C du diagramme).

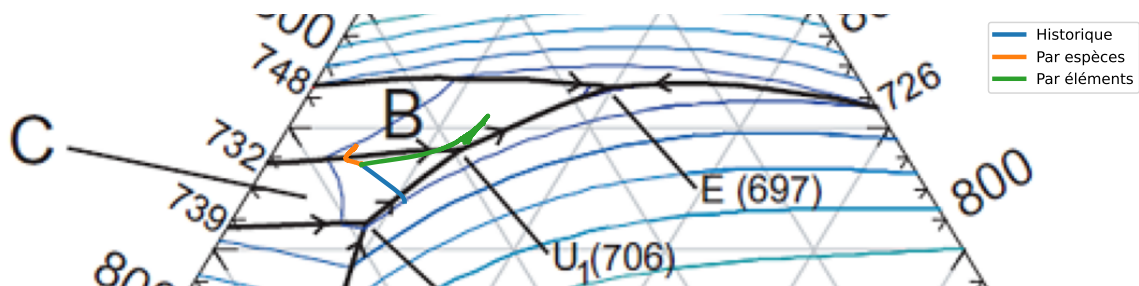


FIGURE 5.2 – Position des sels combustibles sur le diagramme ternaire pour différentes stratégies d'alimentation

Ces considérations permettent de conclure que, dans le cas d'un incinérateur simulé avec un schéma de traitement avec réinjection, la stratégie d'alimentation et de contrainte la plus pertinente est celle alimentant par éléments et contrôlant l'électroneutralité, un mauvais contrôle de ce dernier pouvant impliquer des biais importants sur les bilans d'entrée et de sortie, et donc par la suite dans les scénarios tels que ceux présentés dans le chapitre 6. Cependant, il pourrait être possible dans les faits de considérer une approche mélangeant ces deux stratégies, avec des alimentations par espèces et des alimentations d'appoint par éléments pour, par exemple, corriger la lacune en chlore.

5.1.3 Évaluation des critères de performance

5.1.3.1 Impact de la puissance volumique sur les performances d'incinération

Pour étudier plus précisément les effets qui relèvent de la puissance totale du réacteur et ceux qui relèvent de la puissance volumique (ou spécifique), les simulations des RAPTOrs de 2 m³ de respectivement 300 MW_{th} (150 MW_{th}/m³) et 500 MW_{th} (250 MW_{th}/m³) sont comparées avec deux simulations intervertissant les puissances spécifiques par rapport aux puissances totales en **augmentant** ou **diminuant** le volume du cœur comme le récapitule le tableau 5.5. Tous ces réacteurs sont des incinérateurs de plutonium, alimentés avec du Pu ex-UOX.

Simulation	Volume	Puissance	Puissance volumique
2 m ³ – 300 MW _{th}	2 m ³	300 MW _{th}	150 MW _{th} /m ³
2 m ³ – 500 MW _{th}		500 MW _{th}	250 MW _{th} /m ³
1,2 m ³ – 300 MW _{th}	1,2 m ³	300 MW _{th}	250 MW _{th} /m ³
3,33 m ³ – 500 MW _{th}	3,33 m ³	500 MW _{th}	150 MW _{th} /m ³

TABLEAU 5.5 – Tableau récapitulatif des quatre simulations intervertissant les puissances totales et spécifiques

La figure 5.3 montre le rendement d'incinération des actinides au cours des quatre évolutions tandis que la figure 5.4 montre le bilan de production de l'américium et du curium.

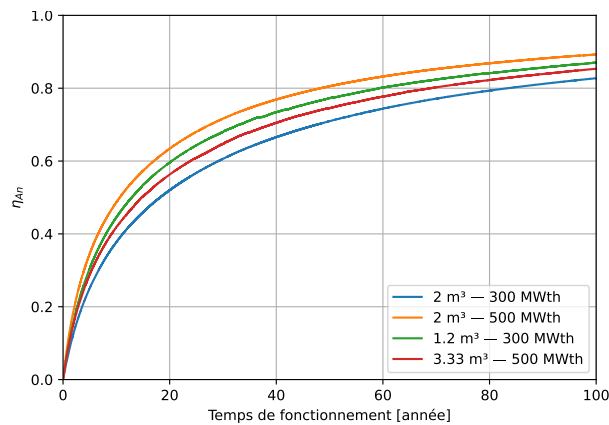


FIGURE 5.3 – Rendement d'incinération des actinides

La figure 5.3 renseigne qu'à puissance volumique constante, un réacteur de plus grande puissance a un meilleur rendement d'incinération, impliquant qu'il incinère plus rapidement la matière mobilisée (c'est-à-dire alimentée dans le réacteur). De même à puissance constante, un réacteur avec une plus grande puissance volumique va incinérer la matière mobilisée plus rapidement. Pour les réacteurs de 150 MW_{th}/m³, la différence de temps pour arriver à un rendement d'incinération de 80 % est de 14,9 ans tandis que pour les réacteurs de 250 MW_{th}/m³, cette durée est de 12,5 ans.

La figure 5.4 renseigne sur le fait qu'en miroir du rendement d'incinération, plus un réacteur a une grande puissance, d'abord totale puis spécifique, moins il va produire d'américium par captures. Par exemple, à puissance constante, le réacteur de 1,2 m³ produit 36,8 %_{mass} d'américium en moins que la version 2 m³ de même puissance au bout de 100 ans avec un volume 40 % plus faible. Ce nombre tombe à 27 %_{mass} pour le curium. De même, le réacteur de 3,33 m³ produit 57,8 %_{mass} d'américium (42,3 %_{mass} de curium) en plus que la version 2 m³ avec une augmentation de 66,67 % du volume. Cet effet va se retrouver en décalage sur la production de curium : les simulations avec une même puissance totale vont avoir les mêmes tendances dans les 15 premières années d'évolution puis les trajectoires vont se séparer. Cependant, à volume total, la puissance thermique

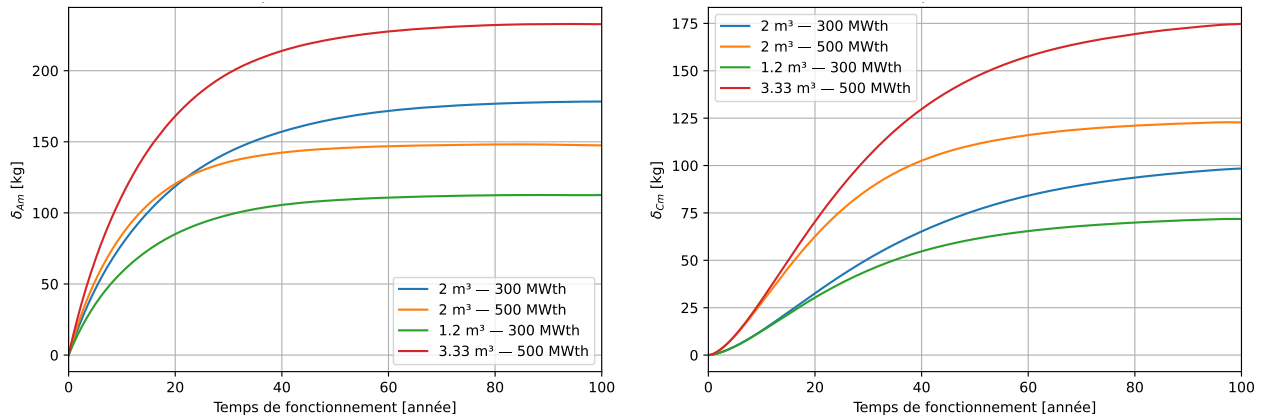


FIGURE 5.4 – Bilan de production de l'américium (à gauche) et du curium (à droite)

a un impact direct sur la production d'américium : avec une augmentation de 66,67 % de cette puissance, la production de curium augmente de 24,7 %_{mass} tandis que celle d'américium baisse de 17,3 %_{mass}.

Le changement de puissance volumique a le même impact que le changement de puissance totale sur la plupart des aspects étant donné qu'il s'accompagne d'un changement de volume du cœur. Plus la puissance thermique d'un réacteur est grande, plus celui-ci va produire de fissions par seconde, et donc plus de captures sur le plutonium. Mais le plus grand flux de neutrons va également augmenter le nombre d'absorptions sur l'américium, ce qui va compenser les captures sur le plutonium : une plus grande puissance va produire moins d'américium. Enfin, ce plus grand nombre de captures sur l'américium va augmenter la production de curium. Ainsi, un incinérateur de plutonium va forcément produire ces deux actinides mineurs et il est nécessaire de faire un arbitrage entre l'optimisation de la quantité produite de l'un et de l'autre.

5.1.3.2 Impact de l'isotope du plutonium sur les performances d'incinération

Cette partie compare d'une part, le RAPTOR² de 300 MW_{th} alimenté en plutonium ex-UOX avec d'autre part, deux réacteurs alimentés en plutonium provenant de combustible MOX utilisé et ayant une puissance de 300 et de 500 MW_{th}. Les vecteurs isotopiques de ces deux plutoniums ainsi que leur qualité fissile (Q_{fis}) sont indiquées dans le tableau 5.6.

Plutonium	ex-UOX	ex-MOX
²³⁸ Pu	3,1	4,21
²³⁹ Pu	52,14	38,17
²⁴⁰ Pu	25,2	32,44
²⁴¹ Pu	11,8	12,47
²⁴² Pu	7,76	12,71
Q_{fis}	63,94	50,64

TABLEAU 5.6 – Vecteur isotopique des deux plutoniums considérés (en %_{mol})

La figure 5.5 montre les bilans de production de l'américium et du curium et la figure 5.6 montre la proportion de fission des actinides pour les trois simulations considérées (les simulations se voyant estampillées d'un

2. Les quatre simulations présentées dans cette partie proviennent d'une étude du début de la thèse utilisant le volume historique de 1,94 m³ en cœur mais ces résultats peuvent être assimilés à la géométrie de 2 m³ du projet MIMOSA [162].

« (MOX) » sont celles utilisant le plutonium ex-MOX tandis que les autres utilisent le plutonium ex-UOX).

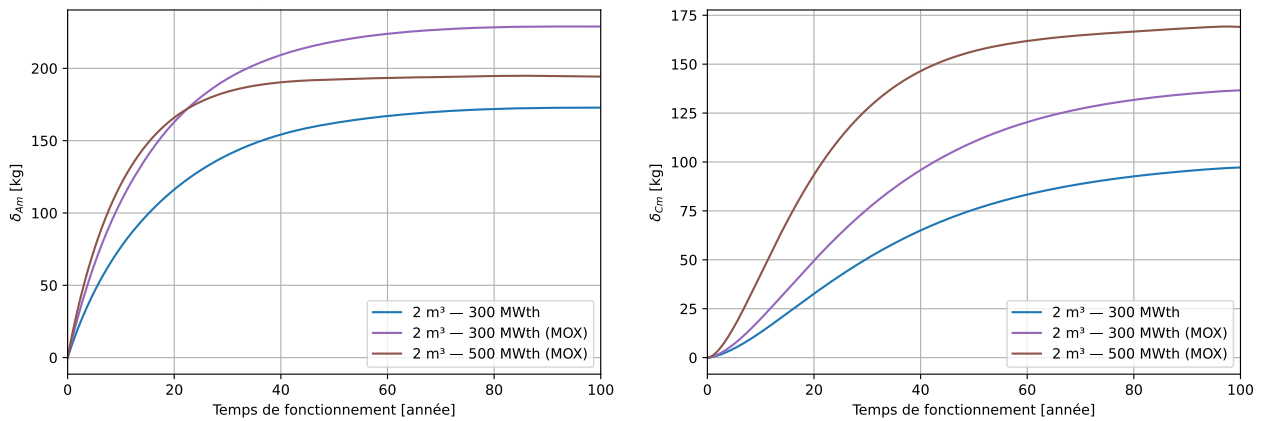


FIGURE 5.5 – Bilan de production de l'américium (à gauche) et du curium (à droite)

La figure 5.5 enseigne qu'à puissance constante, un réacteur alimenté avec du plutonium ex-MOX va produire plus d'américium (+34,4 %_{mass}) qu'avec du plutonium ex-UOX. Cela s'explique dans un premier temps par la plus grande présence des isotopes pairs (238, 240 et 242) dans le plutonium ex-MOX (+26,8 %_{mol}), or ceux-ci vont plus capturer que les isotopes impairs (239 et 241), et dans un second temps par des effets de spectre. Ce phénomène se retrouve dans la production de curium (+40,7 %_{mass}) puisqu'une plus grande quantité d'américium implique une plus grande production de curium par capture, toujours à puissance constante.

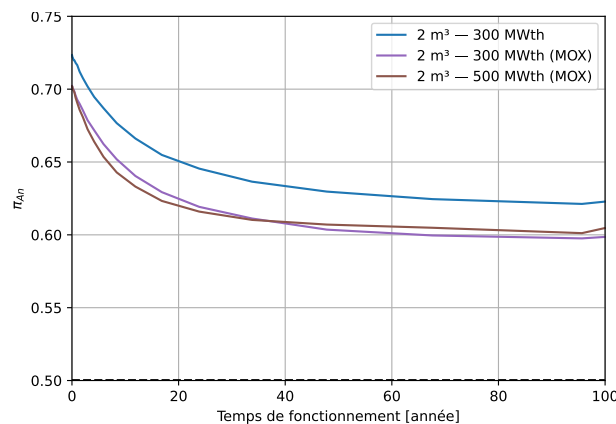


FIGURE 5.6 – Proportion de fission des actinides

La figure 5.6 met en évidence que deux simulations avec la même géométrie et la même alimentation ont des proportions de fissions semblables, peu importe leur puissance. En revanche, il est possible de voir que les réacteurs alimentés en plutonium ex-MOX ont une proportion de fission des actinides un peu plus faible – de l'ordre de 3 % – que ceux alimentés en plutonium ex-UOX. Cela s'explique par la différence de la quantité d'isotopes impairs du plutonium entre les deux vecteurs isotopiques, cet élément représentant 90 % des fissions. Cela s'explique également par la différence entre les quantités d'actinides mineurs (américium et curium) présents dans les deux types de simulation inhérentes à cette proportion d'isotopes impairs du plutonium.

Le vecteur isotopique de l'alimentation n'a pas d'impact significatif sur les bilans matières, en témoigne le tableau 5.7, les écarts étant inférieurs à 3 %_{mol}. Cependant, il est possible d'expliquer l'écart dans la quantité finale de PF présente dans le sel puisqu'un changement dans le vecteur isotopique du combustible va introduire un changement dans les éléments produits par fission, et donc un changement dans la quantité d'éléments extraits par le schéma de traitement. En revanche, le vecteur isotopique impacte les performances

d'incinération puisqu'un vecteur dégradé (provenant de MOX usé) induit moins de fissions en proportion et donc plus de captures en absolu (puisque à puissance constante, il y a sensiblement le même nombre de fissions) et donc cela va avoir un impact sur la composition du sel qui va contenir davantage d'actinides mineurs.

Simulation	Q ^{tité} de sel initiale	Q ^{tité} de sel finale	Écart	Q ^{tité} finale de PF	Proportion
2 m ³ – 300 MW _{th}	215,3 kmol	220,4 kmol	+ 2,3 % _{mol}	1850 mol	0,84 % _{mol}
2 m ³ – 300 MW _{th} (MOX)	215,0 kmol	220,6 kmol	+ 2,6 % _{mol}	1766 mol	0,80 % _{mol}
2 m ³ – 500 MW _{th} (MOX)	215,0 kmol	220,8 kmol	+ 2,7 % _{mol}	2870 mol	1,30 % _{mol}

TABLEAU 5.7 – Tableau récapitulatif des bilans matières pour les géométries 2 m³

💡 À retenir (5.1)

Le RAPTOR historique est un réacteur incinérateur de transuraniens à sels chlorures de moyenne puissance. Ce réacteur est simulé avec un schéma de traitement avec réinjection et permet de servir de point de départ pour les études relatives aux contrôles de paramètres physico-chimiques dans le sel du fait de la nouvelle stabilité des alimentations acquise grâce aux développements effectués dans le code REM. Il sert en outre de base aux réacteurs étudiés dans le cadre du projet MIMOSA, notamment pour les simulations de référence servant aux différents partenaires du projet pour réaliser des études annexes. La puissance spécifique des réacteurs a un impact positif sur la production d'américium mais a en contrepartie un impact négatif sur celle du curium tandis que la qualité fissile du plutonium alimenté va avoir un effet sur la quantité d'actinides mineurs produits.

5.2 ARAMIS-A, pour l'incinération de l'américium

ARAMIS-A, présenté dans la section 2.4.3, est un réacteur incinérateur d'américium développé et étudié dans le cadre du projet national ISAC. Tout au long de ce projet, plusieurs versions de ce réacteur ont été esquissées afin de répondre au mieux aux différents cahiers des charges fixés par les partenaires d'ISAC. L'un de ces critères est d'avoir une performance de consommation des actinides mineurs – présentée dans la section 4.1.2.4 – d'au moins 50 kg/TWh_e [110] ou encore d'au moins 52,6 kg/an [114]. Cet objectif a piloté la conception de huit versions successives du réacteur présentées dans la section 5.2.1 et utilisant le schéma explicité dans la section 5.2.2. Cette section présente également une comparaison avec un code simulant un traitement du sel par *batch*. Enfin, une étude de sensibilités sur l'impact des différents matériaux envisagés dans le cadre de ces esquisses et de différents volumes de sel combustible sur les performances d'incinération est présentée dans la section 5.2.3.1.

5.2.1 Huit versions d'ARAMIS-A

Les huit versions de l'esquisse ARAMIS-A se découpent en quatre échelons principaux :

- V0, s'appuyant sur les travaux réalisés dans le cadre du projet ARAMIS-P et décrit dans le livrable L2.1 du projet [110];
- V1.0, actant le changement de matériaux pour le réflecteur, passant de l'acier 316H au MgO afin de thermaliser le spectre (voir section 5.2.3.1) et décrit dans le livrable L2.2 [111];
- V1.5 [111] et V2.0, décrit dans le livrable L2.3 [112], issues d'optimisation de composants impactant légèrement les volumes de sel dans et hors cœur.

Version	V0p	V0c	V1.0p	V1.0c	V1.5p	V1.5c	V2.0p	V2.0c
Date	Juillet 23	Août 23	Juillet 24	Janvier 24	Juillet 24	Septembre 24	Été 25	Décembre 25
Référence	DI* V0 [163]	L2.1 [110]	DI V1.0 [164, 165]	L2.2 rev A [111]	DI V1.5 [166, 167]	L2.2 rev B [111]	DI V2.0	L2.3 [112]
Volume de sel total [m ³]	5,2	5,106	5,106	5,1	6,62	6,64	7,64	8,26
Volume du cœur [m ³]	1,2	1,2	1,2	1,2	1,2	1,2	1,2	1,2
Facteur d'élanement	2	2	2	2	2	2	2	2
Fraction de sel en cœur [%]	23,077	23,502	23,502	23,529	18,127	18,072	15,707	14,528
Hauteur des plénums [cm]	7,2	7,2	7,2	7,2	16	16	16	16
$\tau_{\text{traitement}}$ [an]	21,42	21,02	21,02	21	27,33	27,42	31,58	34,42
Température du sel [K]	883	883	883	883	883	883	883	883
Température des structures [K]	783	783	783	783	783	783	783	783
Liner	Non	Non	Non	Non	Radial	Total	Radial	Total
Épaisseur liner gaine [mm]	-	-	-	-	4	4	4	4
Matériau liner gaine	-	-	-	-	Inconel 625	Inconel 625	Inconel 625	Inconel 625
Densité liner gaine [g/cm ³]	-	-	-	-	8,38296	8,38296	8,38296	8,38296
Épaisseur liner cuve [mm]	-	-	-	-	20	20	20	20
Matériau liner cuve	-	-	-	-	EM10	EM10	EM10	T91
Densité liner cuve [g/cm ³]	-	-	-	-	7,75414	7,75414	7,75414	7,75414
Épaisseur réflecteur [cm]	90	90	90	45	90	78	78	78
Matériau réflecteur	316H	316H	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO	MgO
Densité réflecteur [g/cm ³]	8	8	2,5016	2,5016	2,14423	2,14423	2,14423	2,14423
Épaisseur protection [cm]	10	10	10	10	10	5	5	5
Matériau protection	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C	B ₄ C
Densité protection [g/cm ³]	2,52	2,52	1,7624	1,7624	1,7624	1,7624	1,7624	1,7624

* données d'interface (DI)

TABLEAU 5.8 – Caractéristiques géométriques des différentes versions d'ARAMIS-A avec mise en emphase des variations entre chaque version

Chaque échelon a donné lieu à deux versions distinctes : une version préliminaire – notée p – utilisée en tant que référence pour tout ce qui a trait aux calculs d'évolution et réalisée au CEA avec le code MOSARELA et une version consolidée par les partenaires à partir de l'esquisse préliminaire – notée c. Le tableau 5.8 présente les caractéristiques géométriques des différentes versions d'ARAMIS-A à date. La composition des différents matériaux se trouve dans l'annexe A - 2. Le tableau 5.9 présente les paramètres utilisés pour la simulation de ces différentes versions avec le code REM dans le cadre de cette thèse.

Puissance thermique [MW_{th}]	300
Puissance spécifique en cœur [MW_{th}/m^3]	250
Température sel [K]	883
Température structures [K]	783
Temps d'évolution [ans]	60
Δt_1 [d]	1
Cycles MCNP	400
<i>Dont inactifs</i>	50
n_{src}	2500

TABLEAU 5.9 – Paramètres REM des différentes simulations d'ARAMIS-A

5.2.2 Les schémas de calcul ISAC

Le réacteur ARAMIS-A, dans ses différentes définitions et descriptions au sein du projet ISAC, est un réacteur alimenté et traité par *batch* avec une période de 6 mois. Cette stratégie convient pour la simulation du réacteur avec les codes d'évolution des différents partenaires du projet, cependant le code REM simule le traitement du sel en continu comme détaillé précédemment. La présente section explicite le schéma de calcul utilisé au cours de ce travail et adapté des schémas développés, décrits et utilisés tout au long du projet ISAC.

5.2.2.1 Schéma d'extraction ISAC, un schéma sans réinjection

Le schéma d'extraction développé dans un premier temps dans le cadre du projet ISAC, adapté pour une opération en continu, est présenté par le tableau 5.10. Il s'agit d'un schéma **sans réinjection** : il n'y a pas de séparation des actinides dans le sel extrait. L'extraction des éléments insolubles – gazeux et métalliques – par bullage est effectuée avec une période de 30 secondes. Le schéma d'extraction par *batch* traite 10 % du volume du cœur tous les 6 mois, soit 120 l. La période d'extraction chimique continue varie ainsi en fonction du volume du circuit combustible, et ce afin de conserver ce volume de 240 l/an extrait. La valeur de cette période est rapportée dans le tableau 5.8 puisqu'étant directement corrélée au volume du circuit combustible.

5.2.2.2 Un mot sur la différence entre les schémas continu et par *batch*

Pour les réacteurs retraités par *batch*, comme le MSFR de référence ou ARAMIS-A, la description du temps d'extraction repose sur un volume extrait dans un temps donné. Par exemple, dans le MSFR de référence, 40 litres sont extraits tous les jours, et dans ARAMIS-A, 120 litres le sont tous les 6 mois. Dans le cadre de la simulation numérique en continu de ces réacteurs, l'extraction est simulée par une pseudodécroissance dans les équations de Bateman (voir section 3.3.1.2), il est donc nécessaire de traduire le volume extrait par à-coups en débit. Soit p la proportion de sel extraite lors d'un *batch* et t_p le temps entre deux *batches*. L'équation (5.1) montre le calcul du temps de vidange total du sel τ_b par simple produit en croix avec le temps t_p nécessaire à l'extraction d'une partie p de sel.

1 H Hydrogène	■ Extraction chimique (Variable, voir tableau 5.8)																2 He Hélium				
3 Li Lithium	4 Be Béryllium	■ Bullage gazeux (30 s)														5 B Bore	6 C Carbone	7 N Azote	8 O Oxygène	9 F Fluor	10 Ne Néon
11 Na Sodium	12 Mg Magnésium	■ Bullage métalliques (30 s)														13 Al Aluminium	14 Si Silicium	15 P Phosphore	16 S Soufre	17 Cl Chlore	18 Ar Argon
19 K Potassium	20 Ca Calcium	21 Sc Scandium	22 Ti Titane	23 V Vanadium	24 Cr Chrome	25 Mn Manganèse	26 Fe Fer	27 Co Cobalt	28 Ni Nickel	29 Cu Cuivre	30 Zn Zinc	31 Ga Gallium	32 Ge Germanium	33 As Arsenic	34 Se Sélénium	35 Br Brome	36 Kr Krypton				
37 Rb Rubidium	38 Sr Strontium	39 Y Yttrium	40 Zr Zirconium	41 Nb Niobium	42 Mo Molybdène	43 Tc Technétium	44 Ru Ruthénium	45 Rh Rhodium	46 Pd Palladium	47 Ag Argent	48 Cd Cadmium	49 In Indium	50 Sn Étain	51 Sb Antimoine	52 Te Tellure	53 I Iode	54 Xe Xénon				
55 Cs Césium	56 Ba Baryum	Ln Lanthanides	72 Hf Hafnium	73 Ta Tantale	74 W Tungstène	75 Re Rhenium	76 Os Osmium	77 Ir Iridium	78 Pt Platine	79 Au Or	80 Hg Mercure	81 Tl Thallium	82 Pb Plomb	83 Bi Bismuth	84 Po Polonium	85 At Astate	86 Rn Radon				
87 Fr Francium	88 Ra Radium	An Actinides	104 Rf Rutherfordium	105 Db Dubnium	106 Sg Seaborgium	107 Bh Bohrium	108 Hs Hassium	109 Mt Meitnérium	110 Ds Darmstadtium	111 Rg Roentgenium	112 Cn Copernicium	113 Nh Nihonium	114 Fl Flerovium	115 Mc Moscovium	116 Lv Livermorium	117 Ts Tennessé	118 Og Oganesson				
57 La Lanthane	58 Ce Cérium	59 Pr Praséodyme	60 Nd Néodyme	61 Pm Prométhium	62 Sm Samarium	63 Eu Europium	64 Gd Gadolinium	65 Tb Terbium	66 Dy Dysprosium	67 Ho Holmium	68 Er Erbium	69 Tm Thulium	70 Yb Ytterbium	71 Lu Lutécium							
89 Ac Actinium	90 Th Thorium	91 Pa Protactinium	92 U Uranium	93 Np Neptunium	94 Pu Plutonium	95 Am Américium	96 Cm Curium	97 Bk Berkélium	98 Cf Californium	99 Es Einsteinium	100 Fm Fermium	101 Md Mendélévium	102 No Nobélium	103 Lr Lawrencium							

TABLEAU 5.10 – Schéma d'extraction ISAC

$$1 - \frac{t_p}{\tau_b} = 1 - p \quad i. e. \quad \tau_b = \frac{t_p}{p} \quad (5.1)$$

Cependant, l'extraction étant modélisée numériquement comme une pseudodécroissance radioactive, en faisant l'hypothèse d'un sel stationnaire, sans variation de densité et donc de volume molaire, la période de pseudodécroissance continue τ_c se calcule selon l'équation (5.2).

$$e^{-\frac{t_p}{\tau_c}} = 1 - p \quad i. e. \quad \tau_c = -\frac{t_p}{\ln(1 - p)} \quad (5.2)$$

La figure 5.7 illustre la différence entre les deux pseudopériodes d'extraction et l'interlude 5.1 explicite le calcul de l'erreur réalisé en privilégiant le calcul de τ_b à la place de celui de τ_c .

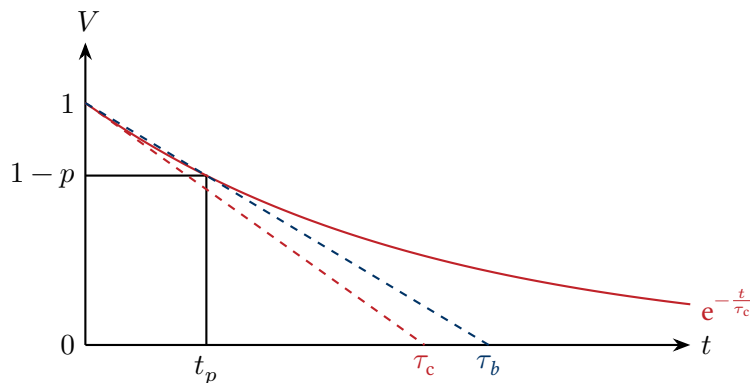


FIGURE 5.7 – Illustration du calcul des pseudopériodes d'extraction avec normalisation du volume

⊕ Interlude 5.1 : Calcul de l'erreur sur le temps de vidange

Soit p la proportion de sel extraite lors d'un *batch*, τ_b la pseudopériode d'extraction linéaire et τ_c la pseudopériode d'extraction exponentielle. La formule (5.3) montre le calcul de l'erreur relative sur le temps de vidange en privilégiant le calcul simple par rapport au calcul de pseudodécroissance ainsi que son équivalence pour les petites proportions.

$$\frac{\tau_b - \tau_c}{\tau_c} = -1 - \frac{\ln(1-p)}{p} \underset{p \rightarrow 0}{\sim} \frac{p}{2} \quad (5.3)$$

Il est intéressant de noter que l'erreur relative ne dépend que de p . La figure 5.8 trace cette erreur en fonction de cette proportion.

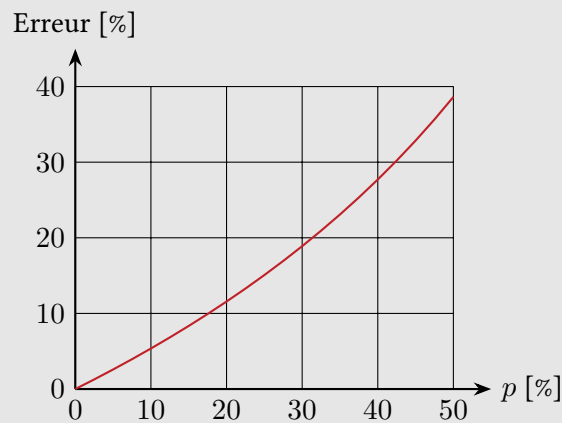


FIGURE 5.8 – Illustration de l'erreur en fonction de p

Pour les petites proportions, l'erreur relative est équivalente à $p/2$. Enfin, le tableau 5.11 montre la valeur de cette erreur pour quelques réacteurs d'intérêt.

Réacteur	MSFR de référence	ARAMIS-A V2.0p	ARAMIS-A V1.0c
p [%]	0,222	1,571	2,353
τ_c	449,5 d	31,583 ans	20,999 ans
τ_b	450 d	31,833 ans	21,25 ans
Erreur [%]	0,111	0,794	1,195

TABLEAU 5.11 – Proportion de sel traité par batch, pseudopériodes et erreur relative pour quelques réacteurs d'intérêt.

Ces erreurs étant de l'ordre du pourcent, celles-ci sont considérées comme acceptables et négligeables, n'invalant pas les résultats produits par les calculs.

5.2.2.3 Les schémas d'alimentation

Le schéma d'alimentation de référence développé pour les codes utilisant des stratégies par *batch* consiste en l'alimentation tous les 6 mois d'un volume de 120 l de sel composé à 62 %_{mol} de NaCl, x %_{mol} de (45 %_{mass} Pu + 55 %_{mass} Am)Cl₃ et enfin de (38- x) %_{mol} de MgCl₂ avec x la fraction calculée pour garantir la criticité du système durant toute la durée du *batch*. Ce schéma d'alimentation peut être qualifié d'affine puisqu'il se compose d'une partie fixe (le NaCl) et d'une partie variable avec un degré de liberté. Un travail d'adaptation pour le code REM est nécessaire afin de simuler les réacteurs ARAMIS-A.

Une première différence fondamentale réside dans le fait que les contraintes contrôlant les alimentations dans ERE sont des observables sur le sel en cœur tandis que le schéma par *batch* impose une contrainte sur le sel alimenté avec la fraction de NaCl. Ainsi, une première approximation est réalisée en imposant la fraction de NaCl – en réalité, des alcalins ACl – à 62 %_{mol} dans le sel en cœur. Cette contrainte est associée à une alimentation libre en NaCl.

La stratégie par *batch* alimente un volume de 120 l de sel neuf directement après avoir extrait 120 l de sel usé. L'interprétation continue de ce phénomène revient à contrôler le volume constant du sel. Cette approximation introduit un biais étant donné que la quantité de matière totale extraite pendant 6 mois est probablement supérieure à 120 l de sel en équivalence étant donné l'extraction en continu des PF gazeux et insolubles participant au volume. Ainsi, le volume d'alimentation est en moyenne surévalué de quelques pourcents, introduisant un biais pour les codes simulant le traitement du sel par *batch* [148]. Cette contrainte est associée à une alimentation libre en MgCl₂.

Enfin, le k_{eff} est contrôlé à chaque instant avec l'alimentation en actinides. Cependant, un changement dans les matériaux utilisés entre la version V0c et V1.0p a des effets non négligeables sur le spectre du réacteur : le passage d'un réflecteur en acier 316H à un réflecteur en MgO a eu pour effet de thermaliser le spectre, voir la section 5.2.3.1. La thermalisation du spectre réduit la proportion de fission de l'²⁴¹Am ce qui augmente la production de ²³⁸Pu par capture sur l'²⁴¹Am et décroissance du ²⁴²Cm. Cela a deux conséquences : l'augmentation du nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération du ²⁴¹Am, passant de 1,9 pour la V0c à 2,2 pour la V1.0p (voir section 4.18) et la production décalée dans le temps de matière fissile (le ²³⁸Pu). Ce second problème introduit une instabilité étant donné que chaque kilogramme d'américium alimenté est accompagné de 818 g de plutonium : l'algorithme du code REM ne peut gérer la réactivité immédiatement induite par le plutonium et celle différée par capture et décroissance sur l'américium. La figure 5.9 illustre ce principe en traçant l'évolution de la réactivité (en bleu), de la masse de ²³⁸Pu (en orange) et de ²⁴²Cm (en rouge) ainsi que le débit d'alimentation en (Pu, Am)Cl₃ (en vert). Les traits gris verticaux indiquent les pas de calculs MCNP.

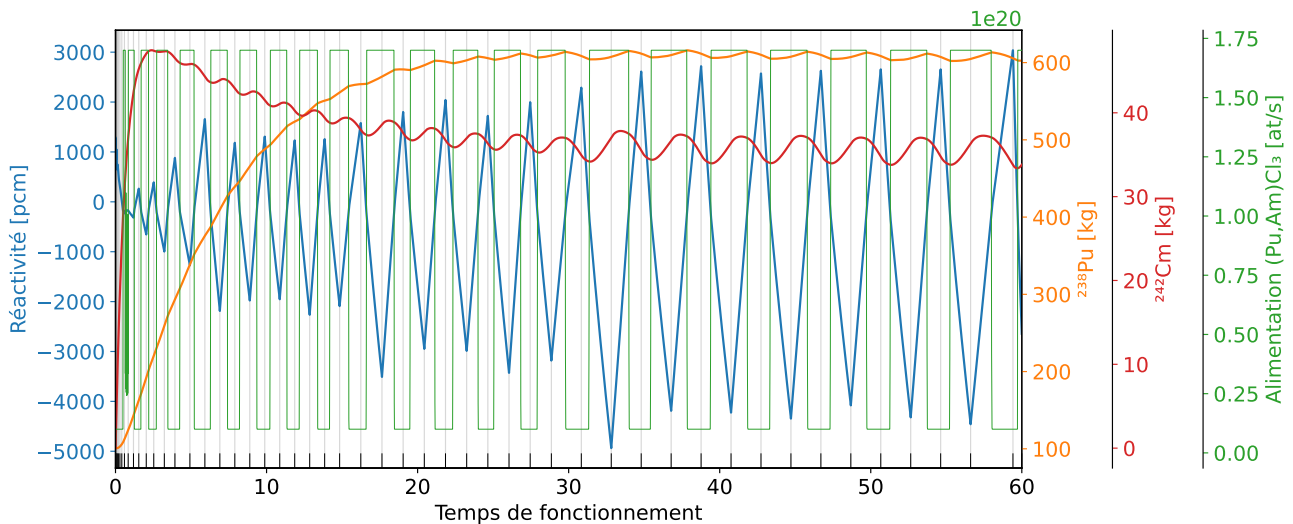


FIGURE 5.9 – Évolution de la réactivité en regard de la masse de ²³⁸Pu et de ²⁴²Cm avant correction

La solution pour corriger ce problème consiste à découpler l'alimentation en plutonium de celle en américium. Pour cela, il est nécessaire d'ajouter une contrainte pour compenser l'ajout d'une nouvelle alimentation : le choix a été fait du contrôle de la fraction constante en actinides en prenant comme valeur cible la valeur initiale. Le tableau 5.12 présente les deux schémas d'alimentation, couplé et découplé. Toutes les simulations d'ARAMIS-A présentées dans le cadre de cette thèse sont réalisées avec le schéma découplé, même les esquisses avec un réflecteur en acier.

Stratégie	Cellule	Alimentation	Contrainte	Cible
Couplée	Cœur	(Pu, Am)Cl ₃	k_{eff}	1
	Cœur	NaCl	f_A^\heartsuit	62 % _{mol}
	Cœur	MgCl ₂	V^\heartsuit	Initial
Découplée	Cœur	PuCl ₃	k_{eff}	1
	Cœur	AmCl ₃	f_{An}^\heartsuit	Initiale
	Cœur	NaCl	f_A^\heartsuit	62 % _{mol}
	Cœur	MgCl ₂	V^\heartsuit	Initial

TABLEAU 5.12 – Schémas d'alimentation et de contrainte des différents ARAMIS-A

5.2.2.4 Schéma d'alimentation par espèces et première comparaison avec le code MOSARELA

Les RAPTOrs, simulés avec une extraction avec réinjection, sont alimentés par éléments afin de prévenir le sel d'être trop réducteur. Les ARAMIS-A sont simulés avec une extraction sans réinjection. La figure 5.10 montre à droite la somme molaire des valences au cours d'une évolution d'un ARAMIS-A V1.5p avec une stratégie d'alimentation découplée par espèces (en bleu) et par éléments (en orange) et à gauche la performance de consommation des AM définie dans la section 4.1.2.4. Ajoutées à cela, les valeurs issues de la simulation réalisée au CEA avec le code MOSARELA sont tracées en vert.

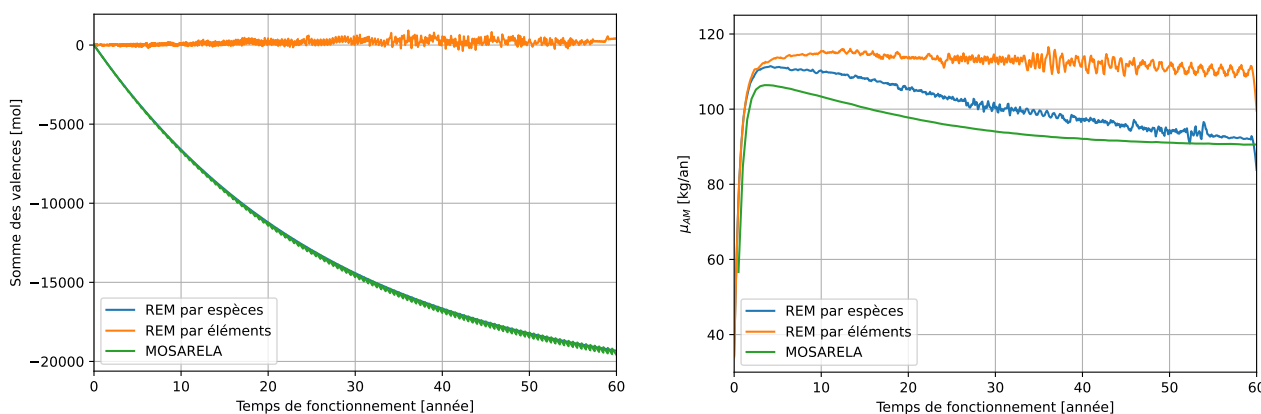


FIGURE 5.10 – Somme molaire des valences (à gauche) et performance de consommation des AM (à droite) pour différentes stratégies d'alimentation

Comme dans le cas du RAPTOr, la stratégie d'alimentation par éléments permet de respecter l'électroneutralité dans le cadre des hypothèses explicitées dans la section 2.1.3.5. Pour rappel, la stratégie d'alimentation par éléments permet d'ajouter une alimentation et donc une contrainte supplémentaire par rapport à la stratégie d'alimentation par espèces : cette contrainte étant donc le respect de l'électroneutralité. Mais contrairement au schéma d'alimentation avec réinjection, la somme des valences est cette fois-ci négative puisque des actinides — électropositifs — sont extraits du sel. Cela peut s'interpréter comme un excès de chlore dans le sel et cela le rend fortement oxydant.

Cependant, cela pose moins de problèmes que dans le cas inverse pour plusieurs raisons. Tout d'abord, la somme des valences — et donc indirectement l'excès de chlore — représente environ 10 %_{mol} de la quantité totale de chlore, quand la lacune en chlore est équivalente, en ordre de grandeur, à sa quantité totale dans le cas du RAPTOr. De plus, il est plus que probable que du chlore en excès s'échappera du sel par des moyens qui ne sont aujourd'hui pas simulés : il est possible d'avoir en tête par exemple l'extraction du zirconium gazeux qui devrait être sous la forme de ZrCl₄ alors que les usines SUR actuelles n'extraient que du Zr pur

(voir section 3.3.2.2). Également, différentes solutions de correction du potentiel rédox sont actuellement à l'étude [168] avec la mise en place d'un tampon (avec de l'uranium, du titane ou de l'américium, par exemple) ou encore une anode sacrificielle. Enfin, et c'est là probablement le point le plus essentiel : l'objectif principal de la simulation des esquisses ARAMIS-A est de pouvoir mener des études comparatives avec les autres partenaires du projet ISAC, en particulier pour les études de scénarios présentées dans la section 6.2.1. En particulier, la somme des valences dans la simulation REM par espèces est proche de la valeur calculée *a posteriori* dans la simulation MOSARELA, avec 1,28 %_{mol} d'écart relatif. Ce résultat est cohérent avec le fait que les modélisations MOSARELA simulent des alimentations par espèces.

La figure 5.10 droite, enfin, montre l'évolution de la performance de consommation des AM, observable majeure au sein du projet ISAC. La stratégie d'alimentation par éléments, maximisant l'alimentation en actinides et en particulier en américium afin de faire correspondre les valences, surestime davantage les performances d'incinération que la stratégie par espèces, s'éloignant des résultats de la simulation MOSARELA avec un écart de 17,69 % contre respectivement 5,94 % pour la stratégie par espèces. Toutes ces observations font que les réacteurs simulés avec une stratégie de traitement sans réinjection, notamment les différents ARAMIS, nécessitent une stratégie d'alimentation par espèces sans prise en compte de l'évolution de la valence du sel. Enfin, il est à noter que des études ont été réalisées portant sur des comparaisons similaires avec les codes PYMS, développé à EDF [146], et CEREIS, développé au CNRS [148], et dans lesquelles les codes simulant des réacteurs avec un traitement par *batch* avaient des comportements similaires.

5.2.3 Comparaisons et sensibilités sur les esquisses ARAMIS-A

5.2.3.1 Impact des matériaux de structure sur le spectre neutronique

Le passage du réflecteur en acier à celui en MgO dans la version V1.0p de l'esquisse ARAMIS-A a été motivé par des questions de radioprotection. Ainsi, une question intéressante à observer est l'impact des matériaux de structure sur le spectre neutronique et donc sur les performances d'incinération du réacteur. Le tableau 5.13 présente quelques matériaux utilisés dans le cadre de plusieurs simulations du réacteur ARAMIS-A avec le code REM, avec pour chacun la densité du matériau et la couleur utilisée dans les graphiques suivants. Il s'agit de la géométrie associée aux versions V0c et V1.0p avec un volume de sel combustible de 5,106 m³ et les réflecteurs en contact direct avec le sel. Tous les matériaux de structure sont à 783 K. À cette température, le plomb est liquide et la valeur de sa densité provient de [169, 170].

Version	V1.0p	V0c						
Matériau du réflecteur	MgO	316H	SiC	B ₄ C	Cr ₂ AlC	WNiCu	Pb	Ni-20Mo
Densité du réflecteur [g/cm ³]	2,5016	8	3,21	1,7624	5,21	17	10,432	9
Couleur des courbes	bleu	orange	vert	rouge	violet	brun	rose	gris

TABLEAU 5.13 – Caractéristiques des différents réflecteurs étudiés dans cette section

La figure 5.11 présente les spectres neutroniques de ces différents ARAMIS-A en début d'évolution. Il est possible de repérer quatre tendances :

- les spectres très rapides, avec les réflecteurs en B₄C et en WNiCu ;
- les spectres plus épithermiques, avec les réflecteurs en 316H et en Pb ;
- les spectre plus thermiques, avec les réflecteurs en MgO et en SiC ;
- enfin, les spectres intermédiaires avec les réflecteurs en Cr₂AlC et en Ni-20Mo.

Cette diversité permet de mettre en évidence deux tendances extrêmes avec le réflecteur MgO et le B₄C. La figure 5.12 montre à gauche les performances d'incinération des AM pour chaque version tandis que la partie droite montre la proportion de fission des actinides présentée dans la section 4.1.2.5.

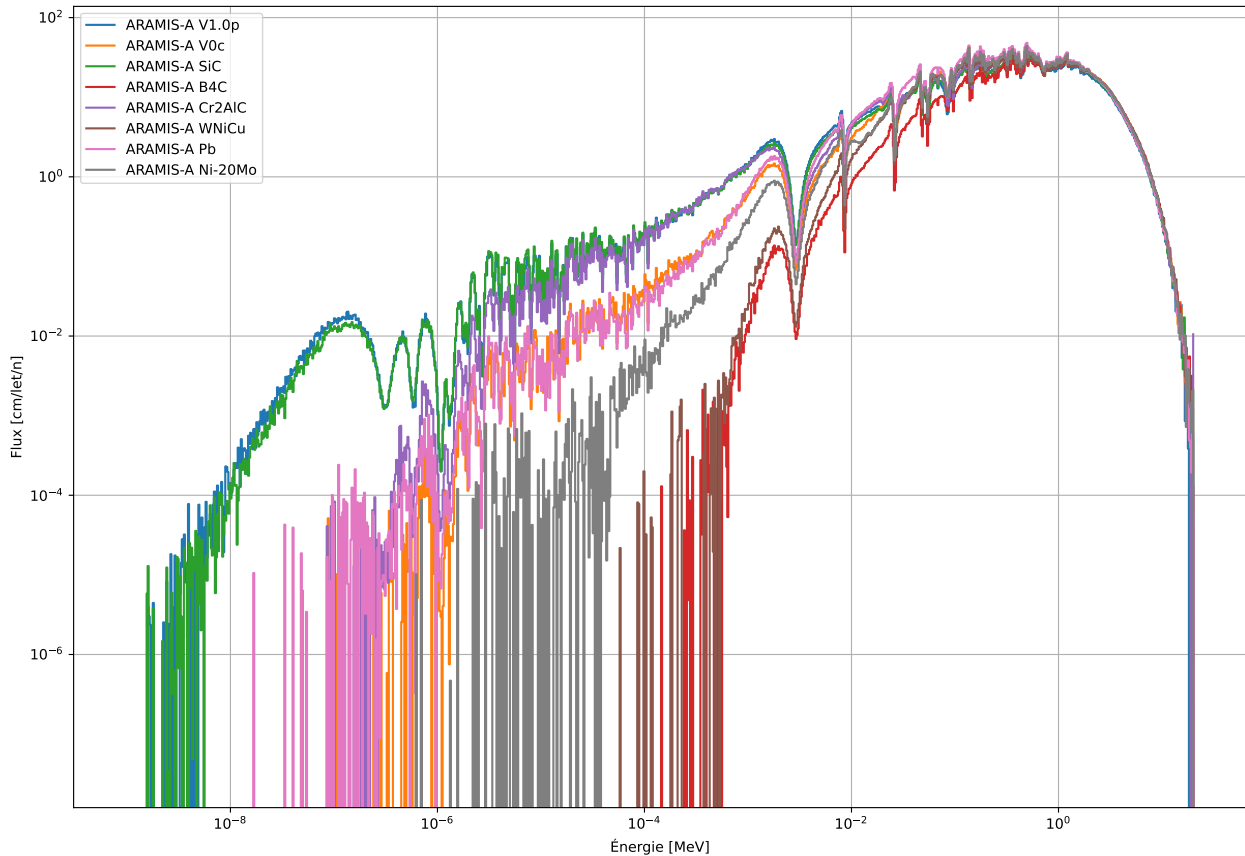


FIGURE 5.11 – Spectres des différents ARAMIS-A

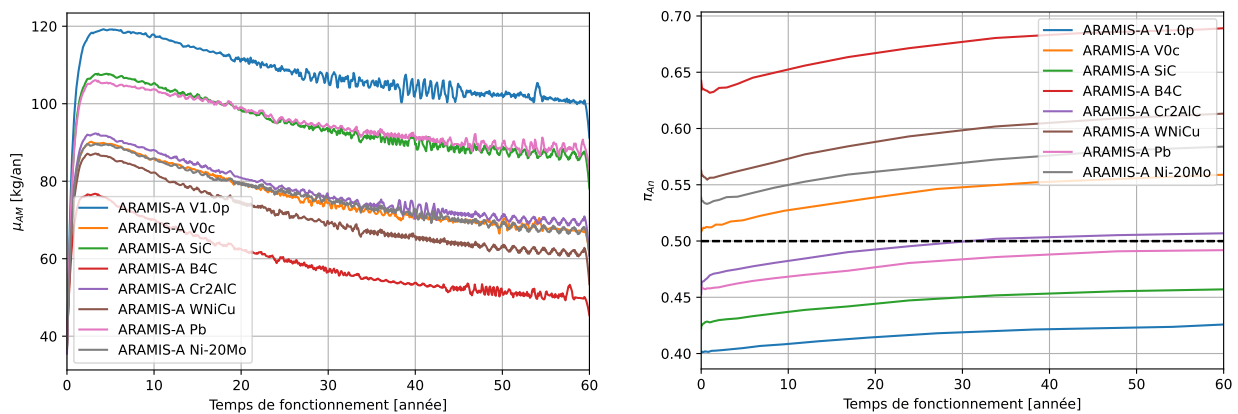


FIGURE 5.12 – Performance d'incinération (à gauche) et proportion de fission (à droite) des différents ARAMIS-A

En mettant de côté le cas du réflecteur en plomb, il est possible de remarquer que les courbes se placent dans le même ordre dans chaque figure : plus un spectre est dur, plus la proportion de fission des actinides est élevée, et en contrepartie plus la performance d'incinération des AM est basse. Le B_4C , garantissant le spectre le plus dur et la plus grande proportion de fission, tend vers la valeur minimale définie au sein du projet de 52,6 kg/an en termes de performance d'incinération en fin d'évolution. Le plomb en revanche a un comportement particulier, étant aussi performant pour incinérer les AM que le réflecteur SiC tout en ayant une proportion de fission 7 % supérieure. Cette figure tend à confirmer que, au regard du critère majeur utilisé au sein du projet ISAC, un spectre thermalisant est préférable et le choix du MgO est pertinent.

Cependant, la figure 5.13 montre à gauche le bilan de production du curium et à droite une estimation des dégâts d'irradiation pour les différents réflecteurs.

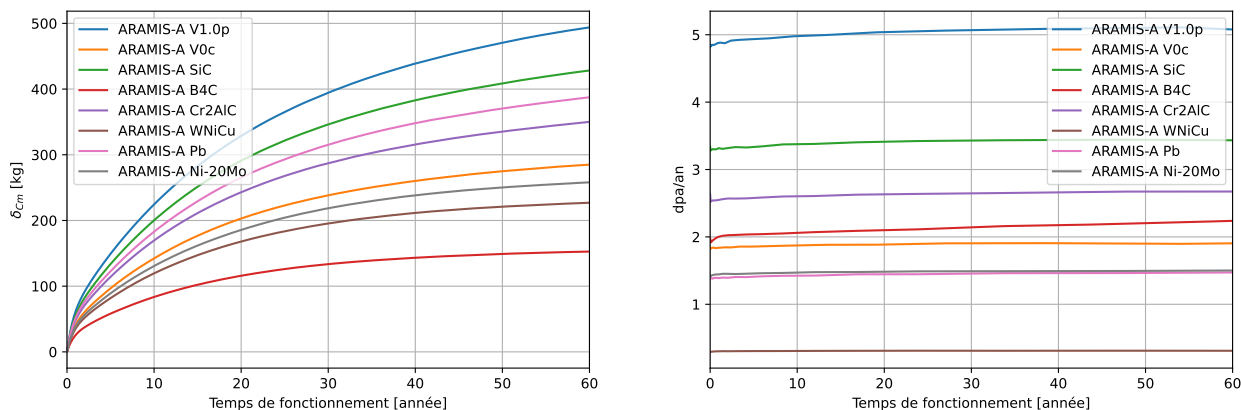


FIGURE 5.13 – Bilan de production du curium (à gauche) et dégâts d'irradiation dans le réflecteur (à droite) des différents ARAMIS-A

Le passage du réflecteur en acier à celui en MgO augmente de 72 %_{mass} la production de curium au bout de 60 ans d'évolution. Il est d'ailleurs possible de remarquer que l'ordre des courbes est à nouveau quasiment respecté en ce sens qu'un spectre dur, qui a une grande proportion de fission des actinides, va conduire généralement à une plus faible production de curium. Cet effet était attendu puisque la thermalisation du spectre augmente la probabilité de capture de l'américium, produisant ainsi plus de curium. Mais en faisant la balance entre la plus grande perte en américium par capture et le plus grand gain de curium, le premier effet gagne par rapport au second. Ainsi, en ne regardant que le critère de performance d'incinération, un spectre plus thermalisé sera plus performant qu'un spectre plus dur, malgré la plus grande production de curium. D'un autre côté, le curium majoritairement produit est le ^{244}Cm avec une demi-vie de 18,1 ans, qu'il est intéressant de comparer avec les 432,6 ans de l' ^{241}Am initial.

Une dernière observable intéressante est l'estimation des dégâts d'irradiation. Le passage de la V0c à la V1.0p augmente de 168 % les dpa dans le réflecteur (voir section 4.1.2.9) : le meilleur matériau du point de vue de la performance d'incinération devient le matériau le plus rapidement endommagé par le flux neutronique. Cela soulève des interrogations sur le pilotage et le fonctionnement d'un véritable démonstrateur puisqu'un réflecteur endommagé devra être remplacé régulièrement. Il est encore une fois intéressant de noter la particularité du réflecteur en plomb qui, étant liquide, ne peut avoir de dpa comme les autres matériaux. Ce plomb liquide, s'il venait à être réellement utilisé pour un RSF, demanderait une cuve pour le contenir, ce qui déplace le problème des dégâts d'irradiation du plomb à cette cuve, produisant ainsi moins de déchets de structure mais ajoutant un risque de rupture de ladite cuve.

5.2.3.2 Impact du volume de sel hors cœur sur les performances d'incinération

La stratégie d'incinération de l'américium adoptée dans le cadre de la conception du réacteur ARAMIS-A repose sur la thermalisation du spectre afin de favoriser la disparition par capture de l'américium. Ainsi, le réflecteur en MgO a été privilégié au sein du projet ISAC à partir de l'esquisse V1.0p dans ce but. Mais à partir de là, le volume du circuit combustible n'a cessé de croître tout en conservant les dimensions du cœur, résultant en une augmentation du volume de sel hors cœur, ou encore de façon miroir une diminution de la fraction de sel en cœur. La section 4.3.2.1 explique l'importance du respect des volumes du circuit combustible. Afin d'illustrer cet effet, deux simulations supplémentaires de deux versions alternatives d'ARAMIS-A avec un réflecteur en MgO sont ajoutées à cette étude : une version « Cœur » ne contenant que le cœur de 1,2 m³ dans le réflecteur et une version « 50 % » de 2,4 m³ proche des RAPTORS présentés dans la section 5.1. Le tableau 5.14 présente ces versions avec le volume de sel combustible et la fraction de sel en cœur.

Version	« Cœur »	« 50 % »	V1.0p	V1.5p	V2.0p
Volume de sel combustible [m ³]	1,2	2,4	5,106	6,62	7,64
Fraction de sel en cœur [%]	100	50	23,502	18,127	15,707
Couleur	bleu	orange	vert	rouge	violet
$\delta_{An}(t_{fin})$ [%]	84,2	73,1	57,1	49,5	45,2
$\langle \mu_{AM} \rangle$ [kg/an]	98,36	100,69	107,64	100,64	96,79

TABLEAU 5.14 – Caractéristiques des différents réflecteurs étudiés dans cette section

La figure 5.14 montre à gauche le rendement d'incinération des actinides (voir section 4.1.2.1) et à droite le bilan de consommation des actinides en fonction du temps. Il est à noter que les masses d'actinides initiales sont rapportées en traitillés sur cette figure, permettant d'avoir les temps τ_{An} de consommation de la masse initiale (voir section 4.1.2.3). La valeur finale du rendement d'incinération en fin d'évolution est rapportée dans le tableau 5.14.

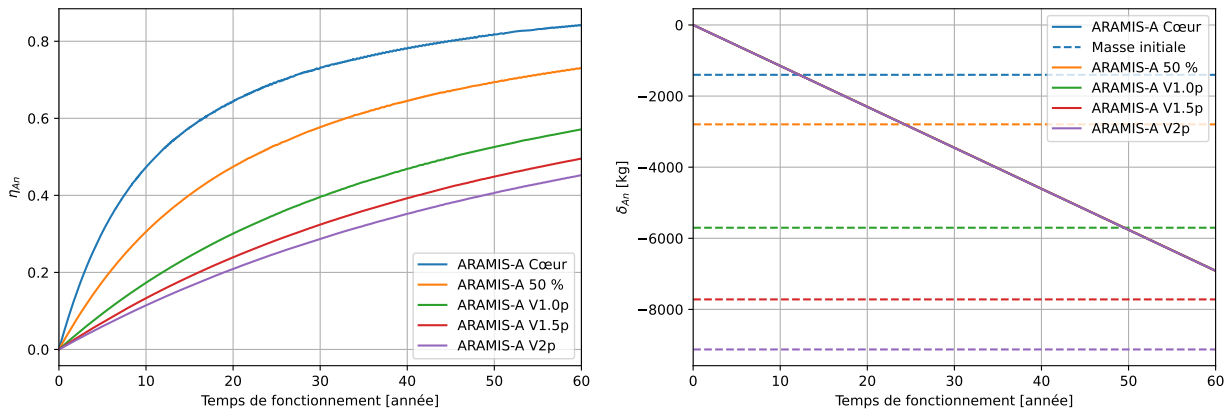


FIGURE 5.14 – Rendement d'incinération (à gauche) et bilan de consommation des actinides (à droite) des différents ARAMIS-A

L'augmentation du volume de sel hors cœur s'accompagne d'une augmentation proportionnelle de la masse mobilisée. Mais la quantité d'actinides consommés pour maintenir la réactivité reste inchangée du fait de la conservation du volume du cœur. Cette proportionnalité se retrouve cependant de deux façons dans la figure 5.14 :

- le temps nécessaire pour atteindre un rendement d'incinération de 50 % qui est de 11,1 ans pour la simulation **Cœur**, de 22,15 ans soit le double pour la simulation **doublant le volume** de sel combustible et enfin de 45,25 ans pour la **V1.0p** avec une fraction de sel en cœur proche d'un quart du volume total ;
- le temps de consommation de la masse d'actinides initiale, étant respectivement de 12,2, 24,3 et 49,5 ans, retrouvant une proportionnalité 1, 2 et 4 avec le volume total.

Les simulations **V1.5p** et **V2.0p** ne consomment pas la masse initiale dans les 60 ans d'évolution, mais la **V1.5p** atteint quasiment 50 % de rendement d'incinération à la fin de la simulation, correspondant à environ 6 fois le temps nécessaire à la simulation ayant un volume 6 fois plus petit. La figure 5.15 montre à gauche la performance d'incinération des actinides mineurs des différentes versions et à droite le nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération de l'²⁴¹Am et de l'²⁴³Am en fonction de la fraction de volume de sel en cœur. Les performances moyennes sont rapportées dans le tableau 5.14.

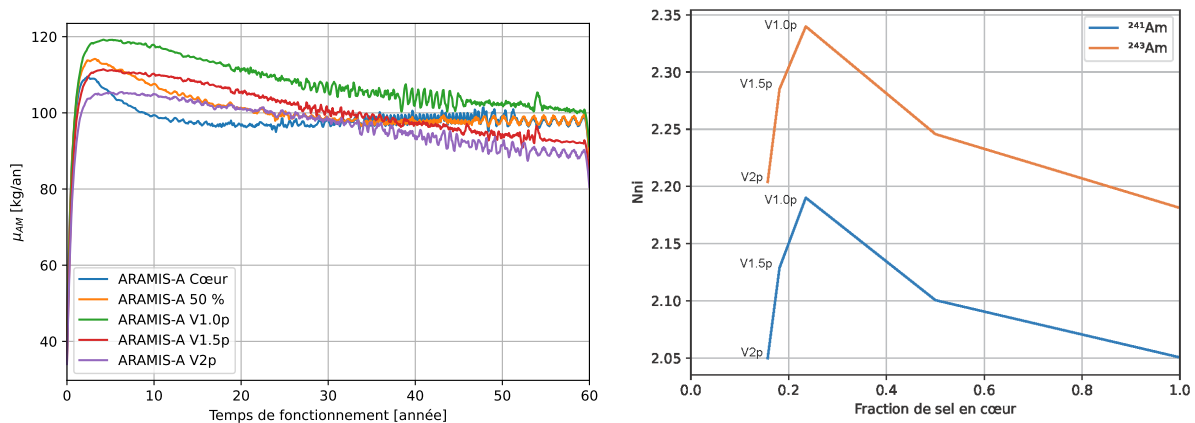


FIGURE 5.15 – Performance d'incinération (à gauche) et nombre de neutrons nécessaires pour l'incinération des amériциums principaux (à droite) des différents ARAMIS-A

Il est intéressant de noter que la différence de masse mobilisée modifie le comportement de la performance d'incinération : après une montée rapide de l'observable sur les premières années, plus les actinides mineurs sont concentrés dans le cœur et plus la performance redescend vite. Cependant, les valeurs moyennes de performance $\langle \mu_{AM} \rangle$ renseignées dans le tableau 5.14 semblent suggérer qu'un optimum existe pour ce critère autour de la V1.0p, bien que les effets sont moindres par rapport à ceux induits par le changement de matériaux. Cet optimum se retrouve dans les valeurs des $N_{n,i}$ dans la figure 5.15 à droite, la V1.0p se remarquant avec 23,5 % de sel en cœur. Ainsi, plus le nombre de neutrons nécessaires à l'incinération des principaux isotopes de l'amériциum est élevé, plus la performance d'incinération est grande, c'est par ailleurs le critère principal utilisé dans le projet ISAC. Cela confirme la stratégie d'incinération par capture de l'amériциum au sein de ce projet.

À retenir (5.2)

ARAMIS-A est un réacteur incinérateur d'amériциum dont le développement est au centre du projet national ISAC. Plusieurs versions successives ont été esquissées au cours du déroulement du projet, avec des volumes et des matériaux différents. Les simulations considérées comme étant celles de référence sont réalisées avec un schéma d'alimentation et d'extraction par *batch* ce qui demande une réflexion afin d'adapter ce schéma pour une simulation en continu permise par le code REM. L'objectif d'incinération de l'amériциum est atteint en comptant principalement sur la capture de celui-ci et la fission du ^{238}Pu en résultant au prix d'une production parallèle de curium. Cette capture est favorisée par le choix de matériaux de structure thermalisants tels que le MgO ou encore en optimisant la fraction de sel en cœur.

5.3 ARAMIS-B, une esquisse alternative du concept ARAMIS-A

Cette section présente quelques résultats préliminaires sur l'ajout d'une couverture³ fertile convertisseuse de plutonium sur le réacteur ARAMIS-A.

3. B pour *Blanket*

5.3.1 Mise en contexte

Certains concepts de RSF régénérateurs de puissance — tels que le MSFR de référence ou encore le MSFR-CI — ont une couverture fertile autour du cœur pour capter les neutrons fuyants et améliorer la régénération. Certains travaux ont été également faits sur l'intégration d'une telle couverture autour de RSF incinérateurs, il est possible notamment de mentionner le concept SyRE (*Système pour le Recyclage et l'Exploitation*) développé par Hugo Pitois dans sa thèse [67] et qui consiste en un RAPTOR affublé d'une couverture fertile à base de sels fluorures et utilisant le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$. L'objectif de l'étude de ce concept est d'étudier une éventuelle amorce de ce cycle pour préparer le déploiement de MSFR dans des scénarios.

Comme traité précédemment, les RSF incinérateurs étudiés dans le cadre de cette thèse ont pour objectif la gestion des actinides mineurs issus d'un parc français de réacteurs gérant le plutonium soit par multirecyclage en REP soit en faisant de la régénération avec des RNR-Na. Cette gestion du plutonium est vouée à succéder à la stratégie de monorecyclage actuellement mise en œuvre avec les combustibles MOX. Mais à l'heure actuelle, le plutonium provenant de ces combustibles usés, aussi appelé plutonium ex-MOX, n'est pas valorisable en tant que tel dans les REP, notamment du fait de son isotopie dégradée. Une solution envisagée dans le cadre de cette section serait d'étudier, en alternative du combustible MOX multirecyclé, la possibilité d'améliorer l'isotopie du plutonium ex-MOX en RSF afin de pouvoir réutiliser dans des REP ce plutonium ex-RSF, assimilable à du plutonium ex-UNE.

Ainsi, la mise en place d'une couverture fertile — ou encore convertisseuse — est étudiée pour convertir du plutonium ex-MOX en plutonium de meilleure qualité. Il est néanmoins nécessaire de définir en premier lieu une métrique pour quantifier la qualité du plutonium de sortie du système. Cette métrique sera la qualité fissile du plutonium, définie ici comme la proportion molaire entre les isotopes impairs et tous les isotopes [58], voir formule (5.4). L'objectif de cette section est donc d'étudier un RSF incinérateur d'AM et convertisseur de plutonium prenant en entrée du plutonium ex-MOX et sortant du plutonium ayant une qualité fissile similaire à celle d'un plutonium ex-UNE.

$$Q_{\text{fis}} = \frac{N_{^{239}\text{Pu}} + N_{^{241}\text{Pu}}}{N_{^{238}\text{Pu}} + N_{^{239}\text{Pu}} + N_{^{240}\text{Pu}} + N_{^{241}\text{Pu}} + N_{^{242}\text{Pu}}} \quad (5.4)$$

5.3.2 Ajouter une couverture fertile à ARAMIS-A

L'approche réalisée dans le cadre de cette étude a été de partir du concept d'incinérateur ARAMIS-A existant et d'y ajouter la couverture convertisseuse en essayant de ne pas altérer les performances d'incinération. Le cœur allongé et favorisant les fuites de neutrons d'ARAMIS-A a été jugé intéressant pour cet objectif, et en particulier, la géométrie des versions V0c et V1.0p puisque minimisant la fraction de sel hors cœur. Ces géométries ont un réflecteur radial de 90 cm d'épaisseur suivi de 10 cm de protection neutronique en B_4C . La couverture se trouve dans ce réflecteur radial, collée au cœur derrière une paroi de 2 cm d'épaisseur et dans le même matériau que le réflecteur enveloppant le réacteur. Cette épaisseur est directement reprise du MSFR de référence et n'a pas été davantage optimisée en première approche. Enfin, le réacteur est baptisé ARAMIS-B, d'une part pour faire suite directement à ARAMIS-A, d'autre part pour l'initiale de *Blanket* signifiant « couverture » en anglais. La figure 5.16 montre une visualisation de la géométrie d'ARAMIS-B.

Les hypothèses de simulation sont les mêmes que celles appliquées à ARAMIS-A V0c : le sel en cœur initial et les paramètres de la simulation REM sont les mêmes, voir tableau 5.9. L'amélioration du vecteur isotopique — et donc de la qualité fissile — du plutonium en couverture repose sur la régénération de ^{239}Pu avec l'ajout d' ^{238}U . Une première étude est réalisée en ajoutant une couverture contenant le sel binaire $\text{NaCl} - \text{UCl}_3$ à l'eutectique et en étudiant l'impact de celui-ci sur le k_{eff} . La figure 5.17 montre l'évolution du k_{eff} en fonction de l'épaisseur de la couverture avec deux versions d'ARAMIS-B : une ayant un réflecteur en acier 316H, à l'instar d'ARAMIS-A V0c, et l'autre avec un réflecteur en MgO comme la V1.0p.

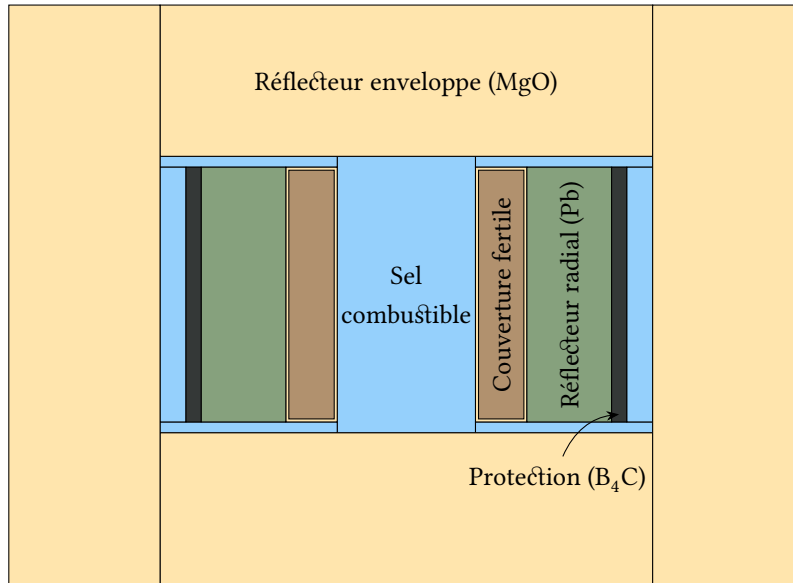


FIGURE 5.16 – Visualisation de la géométrie d'ARAMIS-B

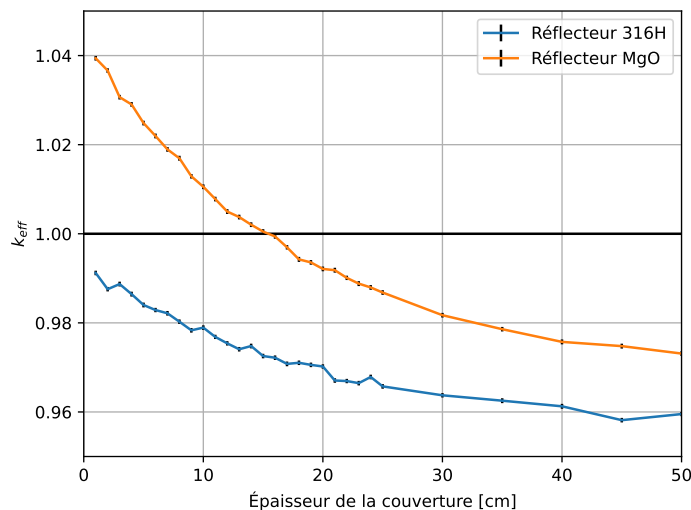


FIGURE 5.17 – k_{eff} en fonction de l'épaisseur de la couverture fertile suivie par un réflecteur en acier (bleu) ou MgO (orange)

Quelques remarques :

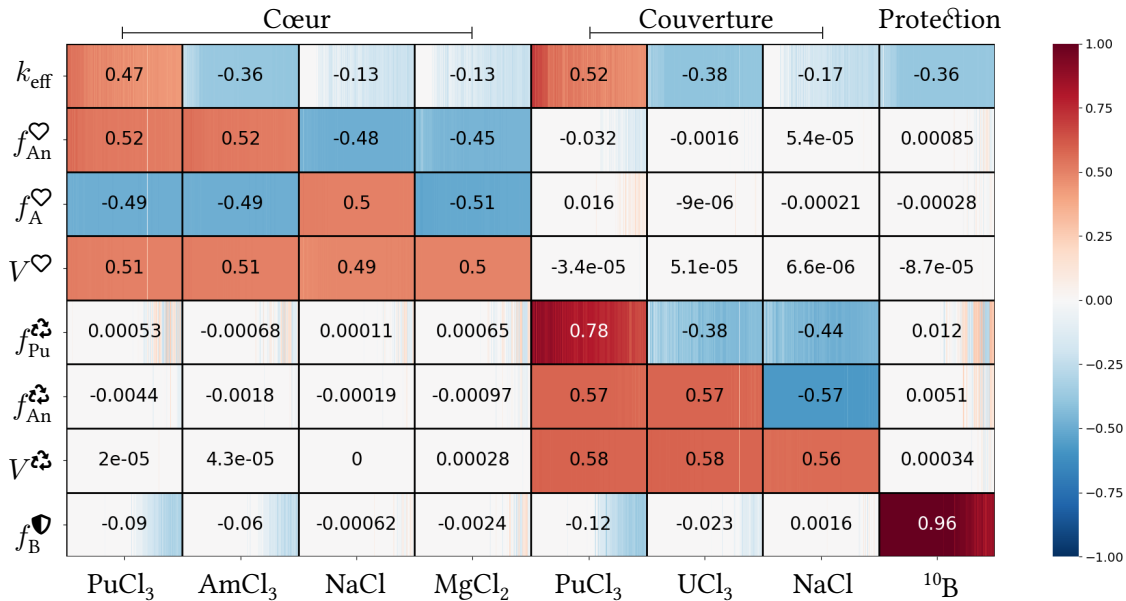
- le passage du réflecteur en acier à celui en MgO change le comportement de la courbe : avec le même sel combustible initial (celui de la V0c), la version avec réflecteur en MgO devient largement sur-critique pour une couverture de 15 cm ou moins ;
- la couverture de la version avec réflecteur en acier dépasse le poids de 3000 pcm à partir de 20 cm tandis que celle de la version MgO atteint ce poids après 50 cm. Le choix d'un poids plus faible est favorable pour des aspects de sûreté en cas de perte du sel de la couverture.

Le concept ARAMIS-A étant passé au réflecteur MgO comme expliqué précédemment, ce choix est pertinent pour le concept ARAMIS-B. Le choix a été fait de prendre une première valeur de référence de 30 cm pour l'épaisseur de la couverture, correspondant à un poids de 1800 pcm avec le réflecteur en MgO. Ce poids est à compenser avec l'ajout de plutonium. Le sel utilisé dans la couverture est donc un sel ternaire $\text{NaCl} - \text{UCl}_3 - \text{PuCl}_3$ avec de l' ^{app}Pu et du Pu ex-MOX. Lorsqu'une configuration est étudiée, le sel en cœur reste le sel optimisé pour ARAMIS-A V0c et l'algorithme Sherlock est appliqué sur le sel en couverture afin d'ajuster la proportion en plutonium tout en restant sur la ligne eutectique (voir section 3.5.2).

La stratégie d'alimentation adoptée est la même stratégie couplée que celle développée pour ARAMIS-A (voir section 5.2.2.3) avec l'ajout de trois alimentations et contraintes associées aux trois composants de la couverture : le contrôle de la fraction de plutonium allant avec l'alimentation en PuCl_3 , celui de la fraction d'actinides pour l'alimentation en UCl_3 et enfin le contrôle du volume ionique avec le NaCl . Le tableau 5.15 récapitule ce schéma et la figure 5.18 montre une visualisation de la matrice jacobienne pendant l'évolution de l'esquisse de référence définie dans la section 5.3.3. Il est possible de remarquer que le plutonium en couverture a un poids plus important que le plutonium en cœur sur la variation du k_{eff} et que le k_{eff} mis à part, les deux cellules sont indépendantes du point de vue des alimentations et des contraintes.

Stratégie	Cellule	Alimentation	Contrainte	Cible
Couplée	Cœur	$(\text{Pu}, \text{Am})\text{Cl}_3$	k_{eff}	1
	Cœur	NaCl	f_A^\heartsuit	62 % _{mol}
	Cœur	MgCl_2	V^\heartsuit	Initial
	Couverture	PuCl_3	$f_{\text{Pu}}^{\text{♻️}}$	Initiale
	Couverture	UCl_3	$f_{\text{An}}^{\text{♻️}}$	Initiale
	Couverture	NaCl	$V^{\text{♻️}}$	Initial
	Protection	^{10}B	f_B^\spadesuit	20 % _{mol}

TABLEAU 5.15 – Schéma d'alimentation et de contrainte d'ARAMIS-B


 FIGURE 5.18 – Visualisation de l'évolution de la matrice jacobienne d'ARAMIS-B (30 cm et réflecteur en MgO)

Une différence demeure cependant avec l'esquisse ARAMIS-A. Ce réacteur a été développé avec une puissance thermique de $300 \text{ MW}_{\text{th}}$. Cette puissance thermique est produite par les fissions et se répartit dans les différentes cellules composant le sel combustible. L'ajout d'une couverture contenant du plutonium, et donc produisant des fissions, va ajouter une partie de puissance produite dans la couverture. Mais la performance d'incinération d'un cœur est directement liée à la puissance thermique de celui-ci. La puissance totale d'ARAMIS-B est donc augmentée à $360 \text{ MW}_{\text{th}}$ pour conserver une puissance thermique en cœur de $286 \text{ MW}_{\text{th}}$, comme le témoigne la figure 5.19.

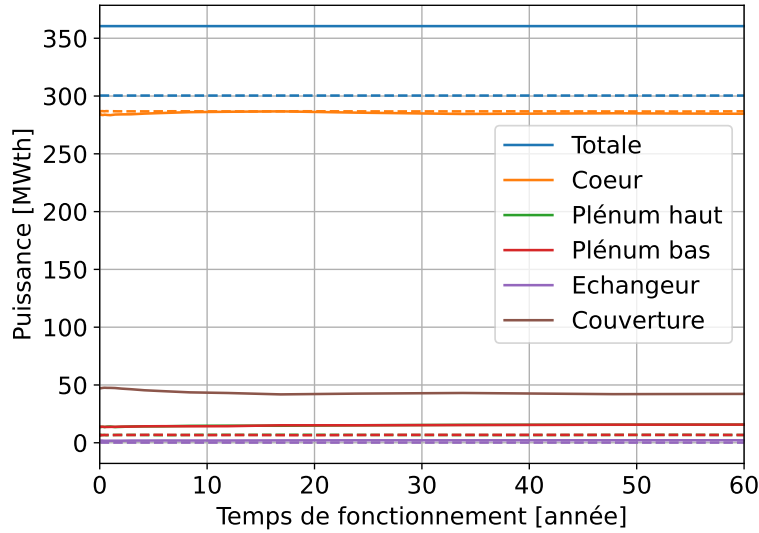


FIGURE 5.19 – Puissance thermique dans les cellules d’ARAMIS-A (traitillés) et d’ARAMIS-B (traits pleins)

Ainsi, le plutonium extrait de la couverture d’ARAMIS-B, appelé dans la suite plutonium B ou Pu B, et qui résulte de l’irradiation du plutonium ex-MOX alimenté et mixé au plutonium régénéré, est voué à avoir une meilleure qualité que le plutonium de départ. Mais ce plutonium pourrait avoir une meilleure qualité que le plutonium ex-UNE cible, introduisant par là même des questions liées à la prolifération et discutées en fin de section. La figure 5.20 illustre le cycle du plutonium mis en œuvre autour d’ARAMIS-B avec le mélange du plutonium B et du plutonium ex-MOX d’entrée pour produire du plutonium équivalent ex-UNE en utilisant la convention présentée dans la section 3.4.2.

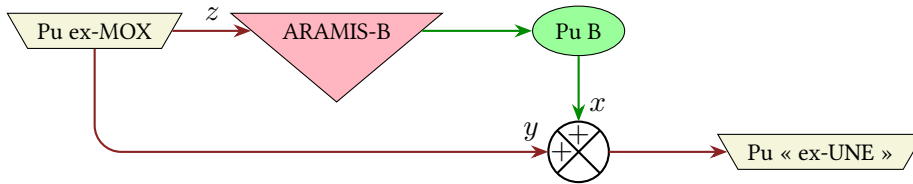


FIGURE 5.20 – Illustration du cycle de conversion du plutonium avec ARAMIS-B

En appelant x la quantité de Pu B extraite d’ARAMIS-B, y est la quantité de Pu ex-MOX à mélanger pour produire $x + y$ plutonium de qualité égale à celle d’un Pu ex-UNE. L’équation (5.5) indique la méthode de calcul de y . En notant z la quantité de Pu ex-MOX alimentée dans le réacteur, la quantité totale de Pu ex-MOX consommée dans le processus est donc $y + z$. La qualité fissile du Pu B est une donnée de sortie de la simulation d’ARAMIS-B tandis que les vecteurs isotopiques et les qualités fissiles des Pu ex-UNE et ex-MOX sont tirées du tableau 5.6.

$$xQ_{\text{fis}}^{\text{B}} + yQ_{\text{fis}}^{\text{ex-MOX}} = (x + y)Q_{\text{fis}}^{\text{ex-UNE}} \Rightarrow y = x \frac{Q_{\text{fis}}^{\text{B}} - Q_{\text{fis}}^{\text{ex-UNE}}}{Q_{\text{fis}}^{\text{ex-UNE}} - Q_{\text{fis}}^{\text{ex-MOX}}} \quad (5.5)$$

Cette esquisse est vouée à remplacer l’esquisse ARAMIS-A dans certains scénarios du chapitre 6 (voir section 6.2.3). Les trois observables d’intérêt sont donc la performance de consommation des actinides mineurs en cœur (voir section 4.1.2.4) et les quantités de plutonium ex-MOX consommées ($y + z$) et « ex-UNE » produites ($x + y$). L’ordre de grandeur de la quantité de plutonium ex-UNE alimentée dans les REP MOX tels que ceux déployés dans les scénarios du chapitre 6 est comprise entre 420 et 450 kg par an et celle de la quantité de plutonium ex-MOX déchargée est comprise entre 260 et 280 kg par an.

5.3.3 Sensibilités autour d'ARAMIS-B

Une étude rapide de sensibilité est réalisée autour de l'esquisse de référence en faisant varier les matériaux des réflecteurs, l'épaisseur de la couverture ainsi que le temps d'extraction du plutonium et en regardant l'impact de cette variation sur les performances d'incinération des actinides mineurs et sur la quantité de plutonium converti.

5.3.3.1 Impact des matériaux des réflecteurs

Tout comme l'esquisse ARAMIS-A, le passage du réflecteur en acier à celui en MgO améliore les performances d'incinération des AM du cœur d'ARAMIS-B grâce à son effet thermalisant sur le spectre. Cela a le même effet sur le spectre de la couverture, ce qui est bien d'une part pour favoriser la capture sur l' ^{238}U mais, d'autre part, cela diminue la fission sur le ^{240}Pu , un isotope particulièrement présent dans le plutonium ex-MOX et dont il est nécessaire de réduire la proportion dans le vecteur isotopique du plutonium de sortie. L'ajout de plomb liquide derrière la couverture permet de redonner un aspect rapide à son spectre. La figure 5.21 montre les spectres initiaux dans le cœur, la couverture et le réflecteur radial d'ARAMIS-B pour deux configurations : une configuration où tous les réflecteurs (radial et enveloppant le réacteur) sont en MgO et une configuration dans laquelle le réflecteur radial est en plomb. Il est possible de remarquer que le spectre en cœur n'est pas impacté par le changement de matériau du réflecteur radial au contraire du spectre en couverture qui se durcit avec le plomb.

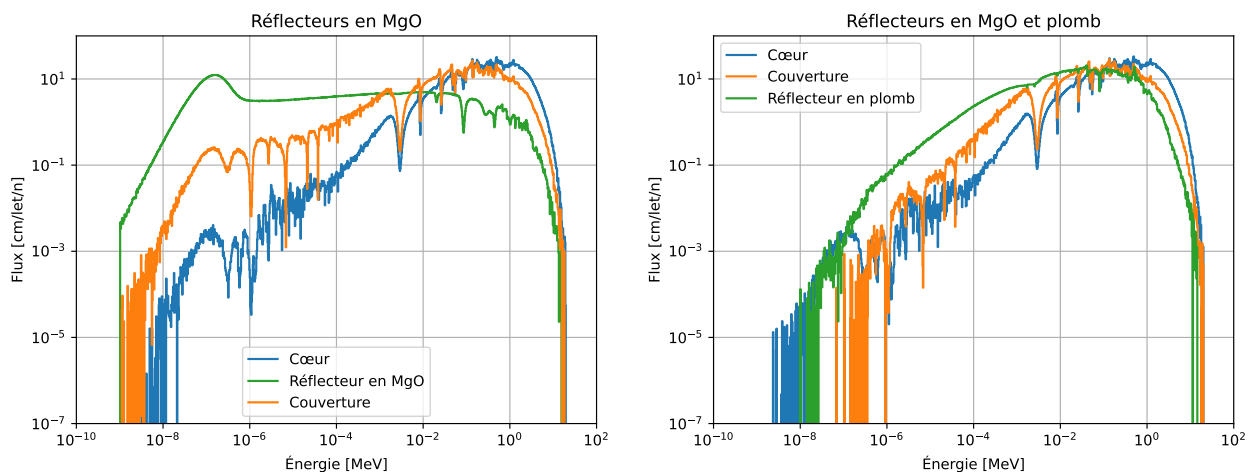


FIGURE 5.21 – Spectres initiaux du cœur, de la couverture et du réflecteur radial en MgO (à gauche) et en plomb (à droite)

Le tableau 5.16 montre les moyennes sur une évolution de la performance d'incinération des actinides mineurs et les débits de plutonium ex-MOX en entrée du système et de plutonium « ex-UNE » en sortie pour quatre configurations : deux utilisant des réflecteurs en acier et deux avec du MgO. Les configurations « +Pb » utilisent du plomb liquide pour le réflecteur radial.

Matériaux des réflecteurs	316H	316H+Pb	MgO	MgO+Pb
$\langle \mu_{AM} \rangle$ [kg/an]	74,97	83,65	97,93	101,80
Pu ex-MOX en entrée [kg/an]	71,78	107,12	115,67	138,30
Pu « ex-UNE » en sortie [kg/an]	77,83	129,96	156,84	177,88

TABLEAU 5.16 – Performance d'incinération et masse de plutonium converti pour différents matériaux de réflecteur

Il est possible de conclure que la configuration utilisant du MgO et du plomb liquide est meilleure dans tous les critères :

- la performance d'incinération des AM est proche de celle de l'esquisse ARAMIS-A V1.5p tout en étant 36 % supérieure à celle de la configuration en acier ;
- la consommation de plutonium ex-MOX est 20 % supérieure à la configuration entièrement en MgO et jusqu'à 93 % à celle de la configuration en acier ;
- la production de plutonium « ex-UNE » est supérieure de respectivement 13 % et 129 % à ces mêmes configurations.

La configuration de référence d'ARAMIS-B possède donc un réflecteur en plomb liquide derrière la couverture fertile. Le tableau 5.17 présente les vecteurs isotopiques du plutonium cible et du plutonium produit par cette configuration après mélange.

Plutonium	ex-UNE (cible)	« ex-UNE » (produit)
^{238}Pu	2,76	2,44
^{239}Pu	52,33	53,68
^{240}Pu	24,70	24,56
^{241}Pu	12,02	10,66
^{242}Pu	8,19	8,66
Q_{fis}	64,3	64,3

TABLEAU 5.17 – Vecteur isotopique des plutoniums cible et produit (en %_{mol})

5.3.3.2 Impact de l'épaisseur de la couverture

Une grandeur intéressante à observer est le choix du dimensionnement de l'épaisseur de la couverture fertile. Le tableau 5.18 présente les observables d'intérêt pour quatre épaisseurs de la couverture fertile : 25, 30, 35 et 40 cm. Aux trois observables déjà introduites est ajoutée la qualité fissile moyenne du plutonium extrait de la couverture fertile, $\langle Q_{\text{fis}}^{\text{B}} \rangle$. À titre d'information, la qualité fissile du plutonium cible est de 63,9 %_{mol}.

Épaisseur [cm]	25	30	35	40
$\langle \mu_{\text{AM}} \rangle$ [kg/an]	105,09	101,80	101,09	95,74
Pu ex-MOX en entrée [kg/an]	132,46	138,30	144,71	148,42
Pu « ex-UNE » en sortie [kg/an]	173,34	177,88	182,47	183,72
$\langle Q_{\text{fis}}^{\text{B}} \rangle$ [% _{mol}]	85,8	72,9	67,3	64

TABLEAU 5.18 – Performance d'incinération, masse de plutonium converti et qualité fissile du plutonium extrait pour différentes épaisseurs de la couverture

Il est possible de remarquer d'une part que les objectifs se croisent : la performance d'incinération des AM s'améliore quand l'épaisseur diminue tandis que la quantité de plutonium converti augmente avec l'épaisseur. D'autre part, la qualité fissile du plutonium produit dans les couvertures épaisses est trop proche de celle du plutonium cible : le plutonium produit n'est pas d'assez bonne qualité pour considérer les couvertures de 40 cm ou plus. En faisant varier l'épaisseur de la couverture de plus ou moins 5 cm par rapport à la configuration de référence, la performance d'incinération des AM et la quantité de plutonium converti n'évoluent que de 3 % ou moins. Le choix est donc fait de rester sur la valeur de 30 cm pour la configuration de référence d'ARAMIS-B.

5.3.3.3 Impact du temps d'extraction du plutonium

Une dernière variable intéressante à considérer est le temps d'extraction du plutonium de la couverture (équivalente à une pseudopériode, voir section 3.3.2.2). Ce temps a été pris arbitrairement égal à 1 an pour la configuration de référence et le tableau 5.19 montre les observables d'intérêt pour cette valeur, sa moitié (6 mois) et son double (2 ans).

τ	6 mois	1 an	2 ans
$\langle \mu_{AM} \rangle$ [kg/an]	102,02	101,80	101,88
Pu ex-MOX en entrée [kg/an]	140,00	138,30	127,25
Pu « ex-UNE » en sortie [kg/an]	172,92	177,88	170,05
$\langle Q_{fis}^B \rangle$ [% _{mol}]	64,7	72,9	84,7

TABLEAU 5.19 – Performance d'incinération, masse de plutonium converti et qualité fissile du plutonium extrait pour différents temps d'extraction du plutonium

Ce temps d'extraction d'un an semble correspondre à un optimum pour ce qui est de la masse de plutonium converti. La performance d'incinération des AM atteint un minimum mais avec une variation de l'ordre de 0,2 % ce qui rend cette observation négligeable. Pour finir, il est possible de remarquer qu'un temps d'extraction plus long augmente la qualité fissile (+16 %_{mol} en multipliant le temps par deux), mais il pourrait être intéressant de s'interroger sur les conséquences de la gestion d'un plutonium avec une bonne qualité fissile en termes de risques liés à la prolifération ou à la sûreté. La valeur de 1 an est donc conservée pour l'esquisse de référence utilisée dans le scénario de la section 6.2.3.

L'esquisse ainsi définie convertit annuellement la production en plutonium ex-MOX de 50 % d'un REP moxé à 30 % tandis qu'elle produit 40 % de la masse de plutonium consommée par ce même REP. Ou encore, un parc de 10 ARAMIS-B peut convertir le combustible déchargé de 5 REP pour en alimenter 4 autres.

💡 À retenir (5.3)

Une esquisse alternative, appelée ARAMIS-B, a été définie en ajoutant une couverture fertile au réacteur ARAMIS-A. L'objectif de cette esquisse, en plus de conserver les propriétés incinératrices d'américium du modèle dont elle est issue, est de convertir du plutonium provenant de combustibles MOX usés en plutonium de qualité équivalente à celle de plutonium ex-UNE – ou encore de combustibles MOX neufs – et ce afin d'étudier la possibilité d'une gestion alternative du plutonium via une relation symbiotique avec un parc de REP moxés. L'esquisse de référence d'ARAMIS-B est construite autour de la version ARAMIS-A V1.0p avec l'ajout d'une couverture de 30 cm suivie d'un réflecteur radial en plomb liquide. Les performances d'incinération des AM sont équivalentes à celles d'ARAMIS-A V1.5p tandis que le système de conversion du plutonium associé au réacteur convertit 138 kg de plutonium ex-MOX en 178 kg de plutonium équivalent à de l'ex-UNE par an, soit respectivement environ 50 % et 40 % du plutonium produit et consommé par un REP moxé à 30 %.

Conclusion du chapitre

Ce cinquième chapitre présente les résultats des différentes simulations des deux réacteurs phares de ces travaux de thèse : RAPTOR et ARAMIS-A. Cette complémentarité se trouve au niveau des objectifs différents de ces deux types d'étude. Les études réalisées sur les concepts de RAPTOR visaient à tester les nouvelles fonctionnalités du code REM sur un RSF incinérateur, tout en contribuant à fournir des données d'entrée à des partenaires du projet MIMOSA. Les travaux sur ARAMIS-A, quant à eux, avaient davantage comme finalité l'étude de scénarios de déploiement, tout en permettant d'effectuer des comparaisons entre les calculs provenant du code REM et ceux réalisés par des partenaires d'ISAC avec d'autres codes neutroniques évoluant.

Forts de la stabilité des alimentations dans les simulations REM de par les développements réalisés, les différents RAPTORs, simulés avec un schéma de traitement avec réinjection des actinides, servent de point de départ pour les études inhérentes aux contrôles de paramètres physicochimiques du sel ainsi qu'aux simulations de références du projet MIMOSA. Les résultats de ces simulations de référence obtenus durant la thèse permettent aux différents partenaires du projet européen de réaliser des études annexes sur le traitement du sel usé ou encore sur la valorisation des produits de fission d'intérêt. Le changement de puissance spécifique montre une différence de comportement au sein de ces réacteurs dans leur version incinératrice de plutonium en ce qui concerne la production d'américium – diminuant de 17,3 %_{mass} quand la puissance augmente de 66,67 % – et de curium, se comportant à l'inverse en augmentant de 24,7 %_{mass}. La qualité fissile du plutonium d'alimentation a également un effet sur la quantité d'actinides mineurs produits, une qualité moindre augmentant cette quantité. Il est observé que la quantité de produits de fission extraite est également impactée par le vecteur isotopique d'alimentation du fait des différents rendements de fission.

Plusieurs simulations ont été réalisées parmi les huit versions du réacteur incinérateur d'américium appelé ARAMIS-A esquissées au sein du projet ISAC et simulées avec un schéma de traitement par *batch* et sans réinjection des actinides. Ce schéma de traitement différent de celui des RAPTORs a demandé une adaptation pour la simulation avec le code REM puisque celui-ci modélise un traitement en continu. Ainsi, les objectifs d'incinération des actinides mineurs ont pu servir de comparaison entre plusieurs versions de ce réacteur avec des matériaux différents ou encore des volumes de sel hors cœur différents. Par exemple, le temps nécessaire à atteindre 50 % de rendement d'incinération des actinides augmente linéairement avec le volume de sel combustible, à volume de cœur constant. Enfin, l'incinération de l'américium est atteinte en comptant sur la capture de ce dernier, donnant après décroissances successives du curium et du plutonium, le premier étant un déchet et le second une matière fissile. Ces captures sont favorisées par un spectre épithermique, orientant le choix des matériaux de structure vers du MgO et une fraction de sel en cœur optimale proche de 25 %.

Enfin, l'ajout d'une couverture fertile au concept ARAMIS-A a été étudié. L'esquisse en résultant, appelée ARAMIS-B, conserve des performances d'incinération de l'américium similaires tout en permettant la conversion de plutonium provenant de combustibles MOX usés en plutonium de qualité équivalente à de l'UOX usé grâce à de la régénération sur l'²³⁸U. L'ajout d'un réflecteur en plomb liquide derrière la couverture, en plus de l'enveloppe en MgO autour du circuit combustible, a été sélectionné pour parvenir à ces fins. Un ARAMIS-B permet ainsi de convertir 50 % du plutonium ex-MOX produit par un REP moxé chaque année tandis que la masse de plutonium en sortie du système correspond à 40 % de la masse de plutonium alimentée dans ce même REP. Cette étude pave la voie vers une gestion du plutonium alternative au MRREP ou aux RNR-Na avec la possibilité de convertir le plutonium sortant des REP moxés pour le réintroduire avec une meilleure qualité dans ces mêmes REP au sein d'un parc. Il serait également intéressant d'ajouter un nouveau degré de liberté dans de futures études en posant de nouvelles hypothèses sur le sel en cœur, qui jusqu'alors était celui d'ARAMIS-A.

Toutes les études présentées dans ce chapitre ont permis d'explorer en détail les capacités d'incinération d'un *panel* de RSF complémentaires, tant au niveau de la physique que de la modélisation associée.

Sorry for the crude nature of this draft, I didn't
have time to paint it.

Emmett "Doc" Brown, *Back To The Future*

6

Scénarios de déploiement

Sommaire

<i>Introduction du chapitre</i>	167
6.1 Simulation du parc français	167
6.1.1 Deux scénarios à l'étude	167
6.1.2 Simuler les REP français	169
6.1.3 Simplification et hypothèses sur le parc	170
6.2 Des RSF en complémentarité du parc français	173
6.2.1 Le scénario du <i>Benchmark</i> ISAC	174
6.2.2 Le scénario <i>TerraWater</i>	179
6.2.3 Un scénario alternatif au <i>benchmark</i> ISAC et une relation symbiotique avec les REP	182
<i>Conclusion du chapitre</i>	188

Figures

6.1 Évolution de la puissance installée dans le scénario <i>Benchmark</i>	168
6.2 Évolution de la puissance installée dans le scénario <i>TerraWater</i>	168
6.3 Vue en coupe de l'assemblage REP modélisé	170
6.4 Schématisation du cycle des combustibles UNE et MOX français	171
6.5 Illustration du cycle modélisé avant hypothèses simplificatrices	171
6.6 Illustration du cycle modélisé après hypothèses simplificatrices	171
6.7 Illustration du cycle modélisé des RNR-Na pendant la phase transitoire et à l'équilibre	173
6.8 <i>Benchmark</i> – Déploiement du parc	174
6.9 <i>Benchmark</i> – Ressources	175
6.10 Bilan des entrées/sorties en Pu et en Am pour ARAMIS-A V0p	176
6.11 <i>Benchmark</i> +ARAMIS-A – Déploiement du parc	177
6.12 <i>Benchmark</i> +ARAMIS-A – Réserve en américium	178
6.13 <i>Benchmark</i> +ARAMIS-A – Répartition des réserves en américium	178
6.14 <i>TerraWater</i> – Déploiement du parc	180
6.15 <i>TerraWater</i> +ARAMIS-A – Déploiement du parc	180
6.16 <i>TerraWater</i> +ARAMIS-A – Ressources	181
6.17 <i>TerraWater</i> +ARAMIS-A – Réserve en américium	182
6.18 Illustration du cycle du plutonium interne d'ARAMIS-B modélisé dans ISF	183

6.19	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B – Déploiement du parc	184
6.20	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B – Ressources	185
6.21	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B+ARAMIS-A – Déploiement du parc	186
6.22	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B+ARAMIS-A – Réserve en américium	186
6.23	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B+ARAMIS-A – Réserve en plutonium total	187

Tableaux

6.1	Caractéristiques des gestions REP utilisées dans les scénarios présentés	169
6.2	Caractéristiques simplifiées des REP historiques dans les scénarios présentés	172
6.3	<i>Benchmark</i> – Récapitulatif des inventaires des principales matières	175
6.4	Caractéristiques pour les ARAMIS-A V0p	176
6.5	<i>Benchmark</i> +ARAMIS-A – Récapitulatif des inventaires des principales matières	177
6.6	<i>TerraWater</i> +ARAMIS-A – Récapitulatif des inventaires des principales matières avec écart relatif par rapport au scénario sans RSF	181
6.7	Caractéristiques pour les ARAMIS-B	183
6.8	Récapitulatif des inventaires en américium dans les différents scénarios du <i>Benchmark</i>	184
6.9	Récapitulatif de la consommation finale en uranium naturel et des inventaires finaux en plutonium et américium dans les différents scénarios du <i>Benchmark</i>	187

Introduction du chapitre

L'efficacité d'incinération d'une substance peut être évaluée par le prisme de la réduction de son inventaire au sein d'un parc de réacteurs. Ce chapitre illustre cet effet en déterminant le nombre de RSF incinérateurs – tels que décrit dans le chapitre 5 – à déployer dans un parc mixte composé de réacteurs REP et RNR-Na pour impacter les inventaires de matières, en particulier pour stabiliser l'inventaire en américium. Une première partie (6.1) présente comment construire un scénario de déploiement en prenant pour exemple le parc français historique et sa prolongation suivant deux trajectoires : l'une en considérant une puissance installée constante et l'autre faisant l'hypothèse d'une augmentation de cette puissance. Cette partie présente aussi la modélisation neutronique en évolution des REP avec le code SMURE pour alimenter les entrées de l'étude de scénario réalisé et avoir des données comparables avec celles des partenaires du projet ISAC. Puis une seconde partie (6.2) illustre le déploiement d'ARAMIS-A dans ces deux parcs français pour la stabilisation de l'américium en complémentarité de la stratégie de gestion du plutonium réalisée par les RNR-Na. Enfin, cette partie présente une étude préliminaire dans laquelle une partie du parc ARAMIS-A est remplacée par des ARAMIS-B qui, en plus de jouer un rôle d'incinérateur d'américium, convertissent une partie du plutonium produit par les REP moxés en plutonium d'une qualité fissile de 64 % et pouvant être de nouveau chargé dans ces REP moxés, permettant ainsi de poursuivre la stratégie de moxage de ces réacteurs tout en déployant la IV^e génération.

6.1 Simulation du parc français

Cette section s'intéresse tout d'abord à la définition des deux trajectoires pour le parc français qui sont étudiées dans la suite de ce travail. Ensuite, il y est explicité la méthode de calcul neutronique des REP français et enfin, les hypothèses réalisées sur le cycle du combustible conformément aux limitations inhérentes à l'outil utilisé.

6.1.1 Deux scénarios à l'étude

Dans le cadre de cette thèse, deux scénarios d'évolution du parc électronucléaire français actuel sont étudiés : un scénario appelé *Benchmark* ISAC dans lequel la puissance installée est maintenue constante et une adaptation du scénario *TerraWater* dans lequel elle augmente.

6.1.1.1 Le scénario du *Benchmark* ISAC

Un *benchmark* entre les codes de scénarios des différents partenaires du projet ISAC (voir section 3.4.3) a été réalisé dans le cadre du lot 3 du projet (voir section 2.3.3.2) [114, 115, 117, 118]. Le scénario « F4 » défini dans le rapport réalisé par le CEA sur l'étude de la transmutation [171, 172] – appelé Dossier 2012 – sert de base pour ce scénario de référence. La figure 6.1 montre la répartition de la puissance installée par génération de réacteurs :

- le parc historique, de II^e génération, s'arrête progressivement de 2020 à 2050 avec une durée de vie de chaque réacteur comprise entre 40 et 50 ans ;
- le parc de III^e génération, composé d'EPR pour un total de 40 GW_e, démarre à partir de 2020 et dure 60 ans ;
- le parc de IV^e génération, composé à ce stade de RNR-Na avec une durée de vie de 60 ans, est déployé avec un premier palier de 20 GW_e à partir de 2040 et un second de 40 GW_e supplémentaires à partir de 2080.

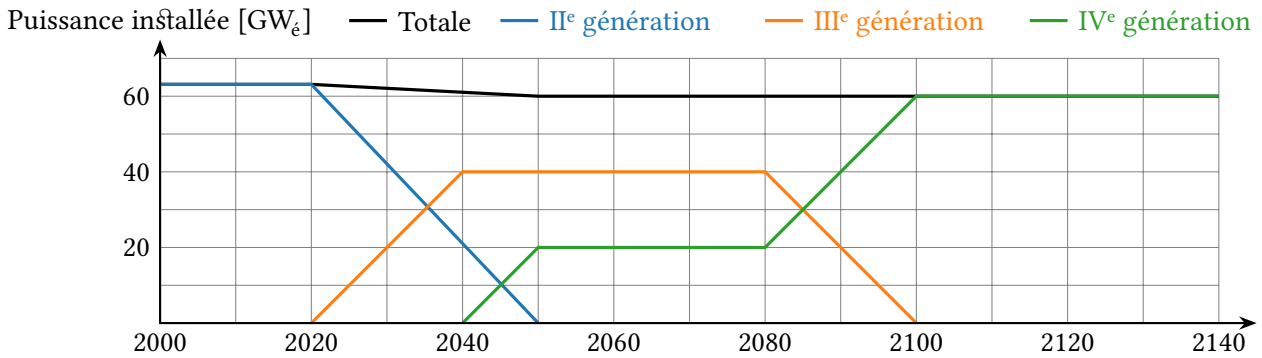


FIGURE 6.1 – Évolution de la puissance installée dans le scénario Benchmark [114, 171]

Ce scénario fait l’hypothèse d’une puissance électrogène française constante dans le temps avec 60 GW_e et les RNR-Na étudiés sont les SFR-V2b de 3600 MW_{th} [172].

6.1.1.2 Le scénario TerraWater

TerraWater est un scénario originellement développé par l’association des Voix du Nucléaire et maintenu par l’institut éponyme [13, 173, 174]. Il s’agit d’un scénario énergétique visant la neutralité carbone en 2050 en définissant une trajectoire de relance massive du nucléaire en France accompagnée de la création de près de 50 GW_e de stockage à l’aide de STEP (Station de Transfert d’Énergie par Pompage) [175]. La figure 6.2 montre l’évolution de la puissance électronucléaire installée en France dans ce scénario par génération de réacteurs :

- le parc historique qui, après Fessenheim en 2020, commence sa fermeture durant les années 2050 après prolongation des réacteurs entre 60 et 73 ans ;
- le parc de III^e génération, inauguré par l’EPR de Flamanville fin 2024 et complété par 13 paires d’EPR2 connectés en 2050 ;
- le parc de IV^e génération, composé de 14 paires de RNR-Na démarrés entre 2051 et 2064 ;
- jusqu’à 13 GW_e supplémentaires à l’horizon 2065, non représentés sur la figure 6.2, produits par des SMR ou des AMR.

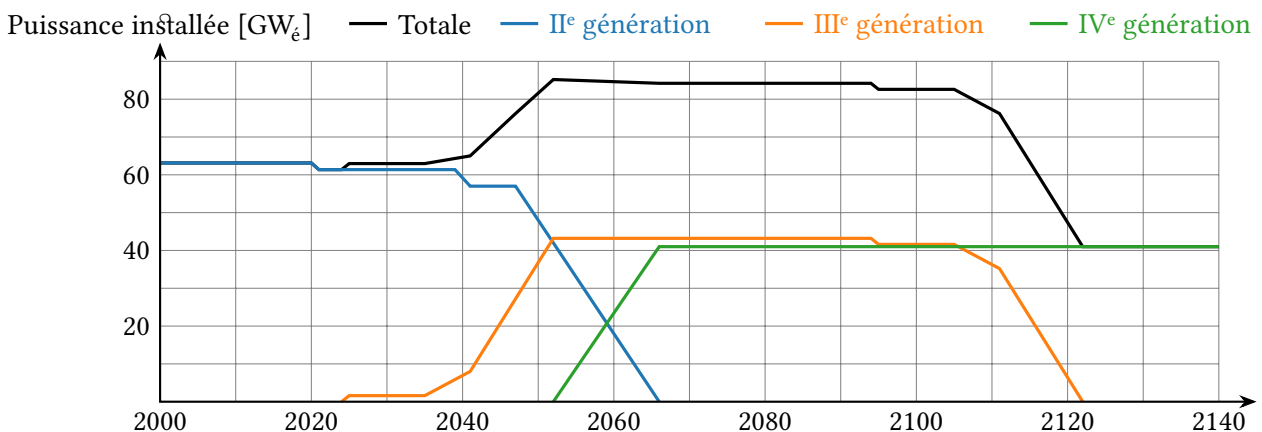


FIGURE 6.2 – Évolution de la puissance installée dans le scénario TerraWater [173]

Dans la littérature disponible autour de ce scénario, les hypothèses s’arrêtent en 2070. Les mêmes hypothèses que le scénario *Benchmark* seront appliquées après cette date : la fermeture du parc d’ERP2 après la fin de la durée de vie de ceux-ci et le maintien constant du parc de RNR-Na.

6.1.2 Simuler les REP français

6.1.2.1 Plusieurs réacteurs et plusieurs gestions

Le parc français historique et son déploiement sont présentés dans la section 1.3.2 de cette thèse. Ce déploiement s'est fait en plusieurs étapes avec différents paliers de réacteurs :

- les réacteurs de 900 MW_e, appelés REP900 et déployés en trois paliers appelés CP0, CP1 et CP2, les deux derniers étant regroupés sous l'appellation CPY (*Contrat-Programme y*);
- les réacteurs de 1300 MW_e, déployés dans les paliers P4 et P'4, 4 étant le nombre de boucles et de GV (contrairement aux 3 des REP900);
- les réacteurs de 1450 MW_e, formant le palier N4;
- l'EPR de Flammanville.

Ces réacteurs sont alimentés avec des combustibles UOX (composés d'UNE ou d'URE) ou des combustibles MOX. En fonction de la puissance thermique des réacteurs, de la taille de leur cuve ou encore du *burnup* à extraire des combustibles, différentes gestions des combustibles ont été définies pour les réacteurs du parc français [62, 176] :

- Gestion standard pour démarrer les réacteurs, appelée Std 900, Std 1300 et Std 1450;
- CYCLADES (*CY*cle *C*ombustible *L*ong pour *A*ugmenter la *D*isponibilité par *É*valuation de *S*ûreté) pour les CP0;
- GARANCE (*G*estion *A*vançé(e) des *R*EP avec *A*daptation aux *N*ouveaux *C*œurs *E*nvisagés) pour les CPY;
- Tiers MOX, Hybride MOX puis Parité MOX pour les CPY moxés;
- GEMMES (*G*estion des *É*volutions et des *M*odifications des *M*odes d'*E*xploitation en *S*ûreté) pour les P4 et les P'4;
- GALICE (*G*estion avec *A*ugmentation *L*imitée de l'*I*rradiation du *C*ombustible en *E*xploitation) testé sur un P4 puis abandonné;
- ALCADÉ (*A*llonger *L*es *C*ampagnes pour *A*méliorer *D*urablement l'*E*xploitation) pour les N4.

Gestion	Palier	Date de mise en service	<i>Burnup</i> en fin de cycle [GW d/t]	Enrichissement initial en ²³⁵ U (x_{enr}) [%]	Teneur initiale en plutonium [%]
Std 900	CP0/CPY	1978	33	3,25	-
CYCLADES	CP0	2000	46,1	4,2	-
GARANCE	CPY	1985	45,3	3,7	-
Hybride MOX	CPY	2000	39,7	-	7,08
Parité MOX	CPY	2009	46	-	8,65
Std 1300	P4/P'4	1985	34	3,1	-
GEMMES	P4/P'4	1996	46,4	4,0	-
Std 1450	N4	1996	45	3,4	-
ALCADE	N4	2007	41,3	3,4	-
GALICE	*	2015	55	4,5	-

*la gestion GALICE telle que présentée ici est utilisée pour tous les paliers – même l'EPR – dans le scénario *Benchmark*

TABLEAU 6.1 – Caractéristiques des gestions REP utilisées dans les scénarios présentés [62, 114]

Le tableau 6.1 montre les caractéristiques des gestions REP utilisées dans les scénarios présentés dans ce chapitre et provenant de [62] pour les gestions mises en place avant 2000 et de [114] pour après. Enfin, l'hypothèse est faite que tous les rechargements en cœur sont effectués par tiers¹ et que les REP moxés le sont à 30 %.

6.1.2.2 Calculs neutroniques en évolution pour les REP

Les bilans d'entrées et de sorties de matières des REP sont réalisés avec l'aide du code SMURE, présenté dans la section 3.2.2. Le cœur des REP n'est pas simulé en entier : seul un morceau d'assemblage de 40 cm de hauteur l'est. Celui-ci est constitué d'un réseau de 17×17 crayons combustibles moins 25 tubes guides. La hauteur totale des assemblages dépend de chaque palier et est rapportée dans le tableau 1.1 page 31 avec également le nombre d'assemblages, la masse totale de métaux lourds contenus dans le cœur ainsi que la puissance thermique des concepts simulés. Aucune barre de contrôle n'est considérée dans l'étude et l'eau contient du bore à 600 ppm constant. Enfin, le combustible a une densité de $10,45 \text{ g/cm}^3$ et une température de 900 K [105, 177]. La figure 6.3 expose une vue en coupe du morceau d'assemblage simulé.

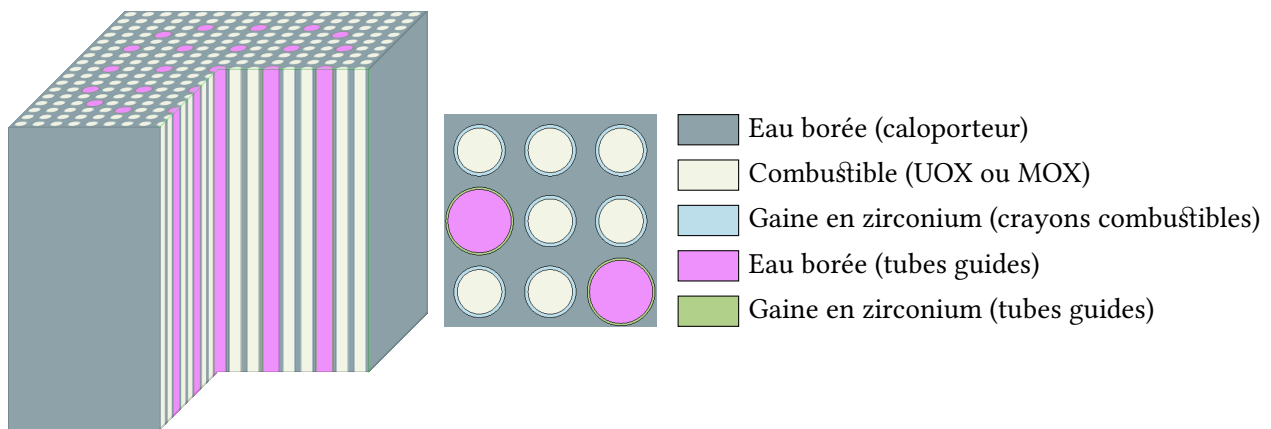


FIGURE 6.3 – Vue en coupe de l'assemblage REP modélisé [105]

Les simulations réalisées avec le code SMURE sont des simulations de criticité (type kcode) assemblage infini, c'est-à-dire avec des réflexions parfaites des neutrons sur toutes les surfaces extérieures du morceau d'assemblage simulé. Le transport est réalisé avec le code Serpent2, avec 100 cycles dont 30 inactifs et 50 000 neutrons sources. Les pas de temps sont irréguliers afin de prendre en compte l'effet xénon [159] : le premier pas a une longueur d'un jour. Le temps final de simulation est calculé au cas par cas par la formule (6.1) avec le *burnup* Bu , la masse de métal lourd initial $m_{\text{cœur}}$, la puissance thermique P_{th} et le nombre de cycles de rechargement g valant ici 3. Toutes ces données sont présentées dans les tableaux 1.1 et 6.1.

$$t_{\text{fin}} = \frac{m_{\text{cœur}} \times Bu}{g \times P_{\text{th}}} \quad (6.1)$$

6.1.3 Simplification et hypothèses sur le parc

6.1.3.1 Simplification du cycle du combustible

La figure 6.4 est une traduction simplifiée dans la convention décrite dans la section 3.4.2 du cycle du combustible français schématisé dans la figure 1.27 (section 1.3.3). Ce cycle simplifié ne prend pas en compte les combustibles URE.

1. Certaines gestions sont faites par quart mais le niveau de simulation des réacteurs étudiés fait que cette donnée n'a aucune influence.

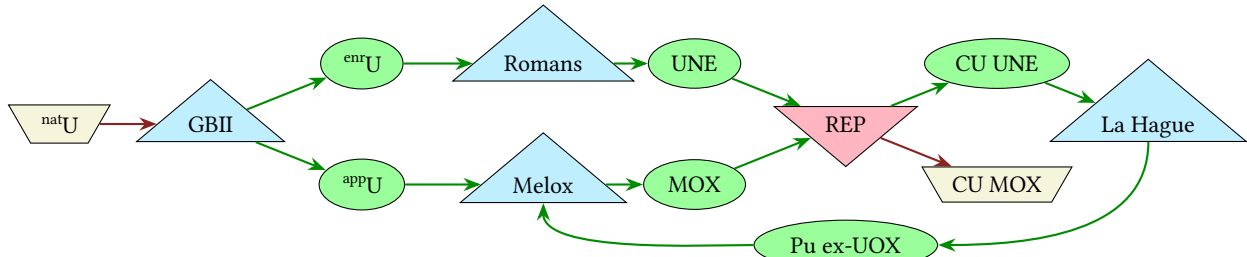


FIGURE 6.4 – Schématisation du cycle des combustibles UNE et MOX français

L'implémentation d'un scénario dans le code ISF nécessite de faire des hypothèses simplificatrices afin de limiter le nombre d'usines et ainsi de fichiers de configuration. Par exemple, l'usine de Romans fabriquant le combustible UNE à partir de l' $enrU$ n'est pas nécessaire : les matières considérées – et les masses associées – étant exclusivement les noyaux lourds, il n'y a pas de fabrication du combustible en tant que tel. Cette hypothèse se retrouve dans le cycle du MOX : les réacteurs moxés sont alimentés directement avec de l' $appU$ et du plutonium, celui-ci étant directement extrait des « réacteurs » sans l'intermédiaire d'une usine de retraitement. La figure 6.5 illustre ces premières hypothèses simplificatrices avec un cycle du combustible tel qu'utilisé dans les travaux antérieurs à cette thèse [1, 118, 153].

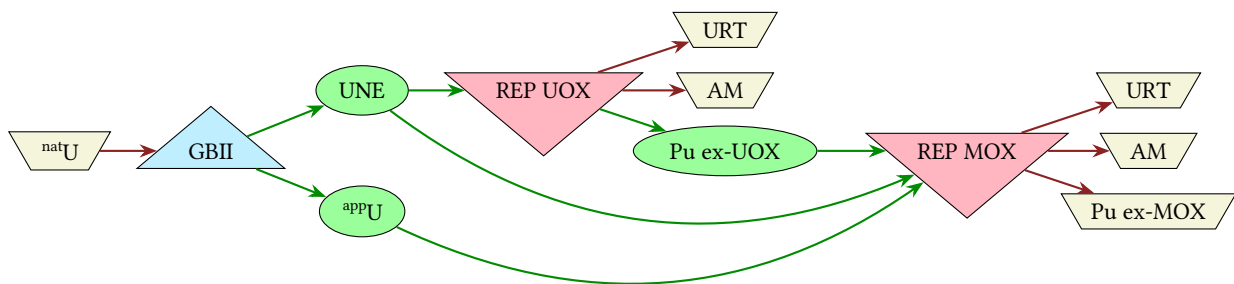


FIGURE 6.5 – Illustration du cycle modélisé avant hypothèses simplificatrices

Dans le cadre de la construction du scénario *Benchmark ISAC*, une description détaillée du parc français a été réalisée. Ce parc, composé de plusieurs réacteurs différents eux-mêmes alimentés avec de l'uranium enrichi à différents pourcentages au cours du temps (voir tableau 6.1), demande de simuler une unité d'enrichissement du combustible par enrichissement et par type de réacteur. L'autre solution consiste à intégrer numériquement l'unité d'enrichissement dans les réacteurs concernés. Cela donne le cycle illustré dans la figure 6.6. Il est à noter que les REP MOX, dont les entrées et les sorties sont composées à 70 %_{mass} comme celles des REP UOX et à 30 %_{mass} de MOX, sont consommateurs nets de plutonium ex-UOX après bilan.

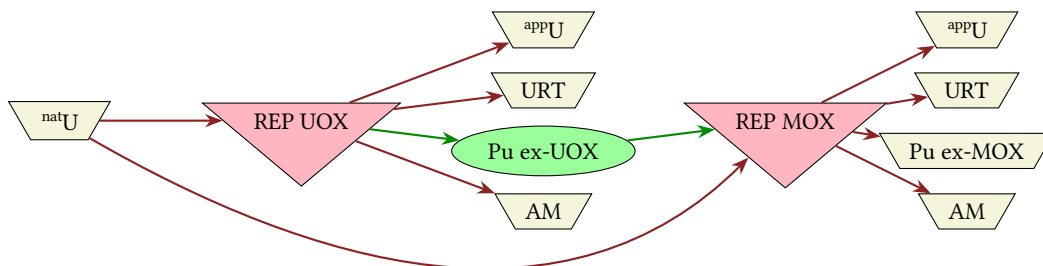


FIGURE 6.6 – Illustration du cycle modélisé après hypothèses simplificatrices

Le code ISF simule le parc avec des pas de temps d'une longueur d'un an. À ce stade de construction du scénario, il est nécessaire de calculer les masses alimentées et extraites des réacteurs tous les ans. Dans un premier temps, en revenant temporairement aux hypothèses illustrées par la figure 6.5, il est possible de calculer pour un réacteur donné la masse annuelle d'UNE alimentée en fonction de la masse en cœur, du temps de cycle et du nombre de rechargements qui le compose, ainsi que du facteur de charge (Kp), voir formule (6.2).

$$m_{\text{UNE}} = \frac{m_{\text{cœur}} \times Kp \times 1 \text{ an}}{g \times t_{\text{fin}}} \quad (6.2)$$

Cette masse d'UNE annualisée est importante pour le calcul des masses d' ^{235}U et d' ^{239}Pu associées à l'enrichissement de l'UNE. Ces deux masses annualisées, calculées pour chaque REP des scénarios étudiés, sont calculées selon les formules (6.3).

$$\begin{cases} m_{\text{natU}} = m_{\text{UNE}} \times \frac{x_{\text{enr}} - x_{\text{app}}}{x_{\text{nat}} - x_{\text{app}}} \\ m_{\text{appU}} = m_{\text{natU}} - m_{\text{UNE}} \end{cases} \quad (6.3)$$

Enfin, le résultat des simulations des réacteurs réalisées avec le code SMURE et, en particulier, les masses d'URT, de plutonium, d'AM mais aussi de PF produites en fin d'évolution sont normalisées à l'aide de cette masse d'UNE initiale.

6.1.3.2 Hypothèses de modélisation du parc REP historique et des futurs EPR

Les deux scénarios présentés dans ce chapitre font l'hypothèse d'une simplification du calendrier de déploiement du parc historique. Le tableau 6.2 présente ces hypothèses pour les réacteurs de génération II et III découpés en paliers. Ces hypothèses concernent le nombre de réacteurs démarrés, la date de mise en service du premier, du rythme de déploiement imposé ainsi que la durée de vie, considérée identique pour chaque réacteur d'un palier. Le palier CP0 est séparé en deux avec la particularité des deux réacteurs de Fessenheim (FES) fermés en 2020. Toutes ces hypothèses proviennent de [15] et, en particulier, de [114] pour le scénario *Benchmark* et de [173] pour *TerraWater*. La durée de vie des paliers utilisée dans ce dernier scénario est une moyenne des estimations de chaque réacteur composant ce palier [173]. Enfin, le facteur de charge des REP de II^e génération est considéré à 77,92 % et celui des EPR de III^e génération est pris à 81,76 % conformément aux hypothèses définies au sein du projet ISAC [114].

Scénario	Palier	CP0 (+FES)	CPY UOX	CPY MOX	P4 / P'4	N4	EPR (+FA3)
Tous	Puissance nominale [MW _e]	890	912	906	1318	1452	1550
<i>Benchmark</i>	Nombre	4 (2)	6	22	8 / 12	4	26
	Date de mise en service	1979 (1978)	1980	1983	1985 / 1987	2000	2020
	Rythme de déploiement [/an]	2	3	3	4 / 2	2	2
	Durée de vie [an]	41 (42)	46	42	48 / 53	48	60
<i>TerraWater</i>	Nombre	4 (2)	6	22	8 / 12	4	26 (1)
	Date de mise en service	1979 (1978)	1980	1983	1984 / 1987	1996	2035 (2024)
	Rythme de déploiement [/an]	2	4	2	4 / 2	1	2 (1)
	Durée de vie [an]	60 (42)	69	70	70 / 71	63	70

TABLEAU 6.2 – Caractéristiques simplifiées des REP historiques dans les scénarios présentés [114, 173]

Le scénario *TerraWater*, utilisant des hypothèses récentes, simule le déploiement des EPR en deux phases : une première avec le démarrage du seul EPR de Flammanville 3 (FA3) en 2024 et une seconde avec le déploiement de 13 paires d'EPR2 à partir de 2035. Ces EPR2 sont considérés avec les mêmes caractéristiques que les EPR du scénario *Benchmark* ; leur rythme de déploiement retenu est de 2 par an.

6.1.3.3 Un mot sur les RNR-Na

Les RNR-Na utilisés dans le cadre de ces études sont des adaptations des SFR-V2b de 3600 MW_{th} développés dans le cadre du Dossier 2012 [172] et considérés dans une variante sans couverture radiale [114]. Les données d'entrée et de sortie n'ont pas été calculées en interne, mais proviennent d'échanges au sein du projet ISAC. Les RNR-Na adoptent deux comportements et deux cycles associés : pendant une première phase transitoire, ceux-ci sont alimentés avec de l'^{app}Pu et du plutonium ex-MOX et sont opérés pour surgénérer du plutonium appelé ici « Pu RNR ». Puis, dans un second temps, une fois les inventaires en Pu RNR mis à l'équilibre, ce plutonium alimente les réacteurs opérés en isogénérateurs de plutonium. La figure 6.7 illustre ces deux fonctionnements.



FIGURE 6.7 – Illustration du cycle modélisé des RNR-Na pendant la phase transitoire (à gauche) et à l'équilibre (à droite)

Au sein du scénario *Benchmark*, le passage entre la phase transitoire et la mise à l'équilibre est fixée à 2060 et le facteur de charge considéré est le même que celui des EPR, soit 81,76 % [114]. L'objectif de ce parc de RNR-Na est de gérer le plutonium à la suite des REP.

💡 À retenir (6.1)

Le parc historique français est simulé selon deux trajectoires : l'une provenant d'un scénario servant de *benchmark* au sein du projet ISAC et tablant sur le maintien d'une puissance installée constante et l'autre provenant du scénario *TerraWater* développé par l'association des Voix du nucléaire misant sur une relance de la puissance électronucléaire française. Les REP et les EPR des différents paliers composant ce parc sont simulés à l'aide du code de calcul neutronique en évolution SMURE et les RNR-Na proviennent des données d'interface du projet ISAC. Des simplifications dans le cycle du combustible sont nécessaires pour la simulation de celui-ci avec le code ISF comme l'intégration des usines d'enrichissement au sein des réacteurs ou encore la séparation poussée des actinides mineurs directement en sortie de ceux-ci.

6.2 Des RSF en complémentarité du parc français

Une première stratégie d'incinération envisageable pour les RSF consiste à transmuter l'américium produit par la stratégie de gestion du plutonium en RNR-Na, voir section 1.4.3. Cette stratégie est étudiée dans trois scénarios : les scénarios *Benchmark* ISAC (section 6.2.1) et *TerraWater* (section 6.2.2) avec le réacteur ARAMIS-A.

6.2.1 Le scénario du *Benchmark ISAC*

La première version du scénario, sans RSF pour servir de référence et dont le profil de puissance théorique est présentée dans la section 6.1.1, permet de déterminer l'inventaire d'américium à incinérer ensuite avec les RSF. L'esquisse ARAMIS-A V0p est ensuite intégrée à partir de 2040 pour donner la seconde version du scénario *Benchmark ISAC*.

6.2.1.1 Le scénario de référence sans RSF

La figure 6.8 montre la chronologie de déploiement du parc français simulé selon les hypothèses du scénario *Benchmark* en termes de puissance électrique installée. La courbe noire continue estampillée « Réalisée » est la somme de toutes les puissances installées et la courbe en traitillés « Demande » est la consigne donnée au code ISF (voir section 3.4.2) : cette consigne suit la puissance installée historique jusqu'en 2020 (voir figure 1.25 page 30) puis continue avec les hypothèses inhérentes au scénario considéré. Il est à noter que le code ISF démarre les réacteurs pour obtenir une puissance réalisée **au moins** égale à la demande ; il est donc possible que la première dépasse légèrement la seconde.

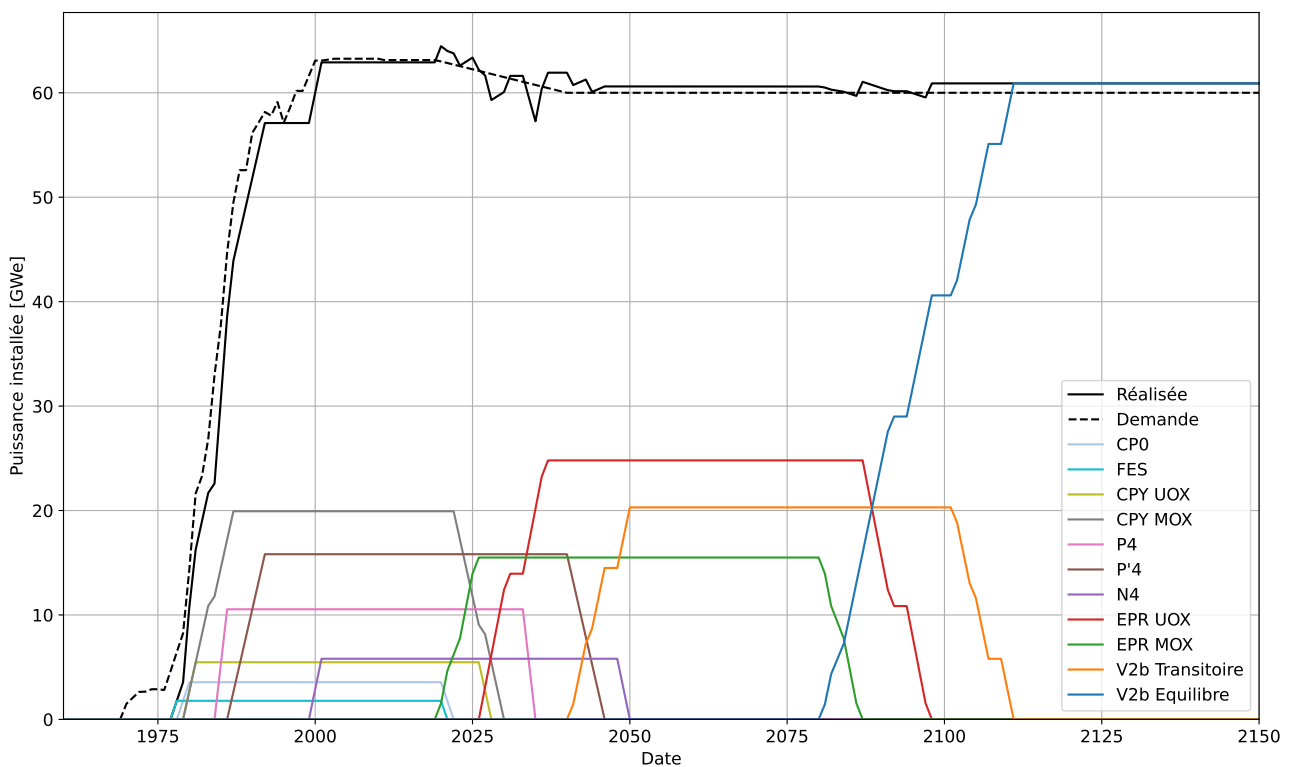


FIGURE 6.8 – Benchmark – Déploiement du parc

Les réacteurs du parc historique, composé des paliers CP0 dont Fessenheim, CPY dont les moxés, P4/P'4 et N4, démarrent selon les hypothèses définies dans le tableau 6.2. Les 26 EPR sont répartis en 16 EPR UOX et 10 EPR moxés à 30 % [114] pour atteindre l'équilibre du plutonium du parc en stabilisant les inventaires de combustibles UOX usés : l'équivalent massique du Pu ex-UOX déchargé des REP UOX annuellement est chargé en REP MOX. Enfin, comme expliqué ci-dessus, les RNR-Na sont déployés en deux phases à partir de 2040. La première, lancée avant 2060, est composée de RNR-Na V2b transitoires permettant de surgénérer du Pu RNR nécessaire au lancement de la seconde, à partir de 2080 et qui est composée de RNR-Na V2b à l'équilibre et déployée en remplacement des EPR. La figure 6.9 montre les réserves des différentes ressources d'intérêt en fonction du temps et le tableau 6.3 explicite les valeurs pour les matières principales pour des dates d'intérêt (début de la stratégie de monorecyclage du plutonium en MOX, début de déploiement de la III^e et de la IV^e génération et fin de vie).

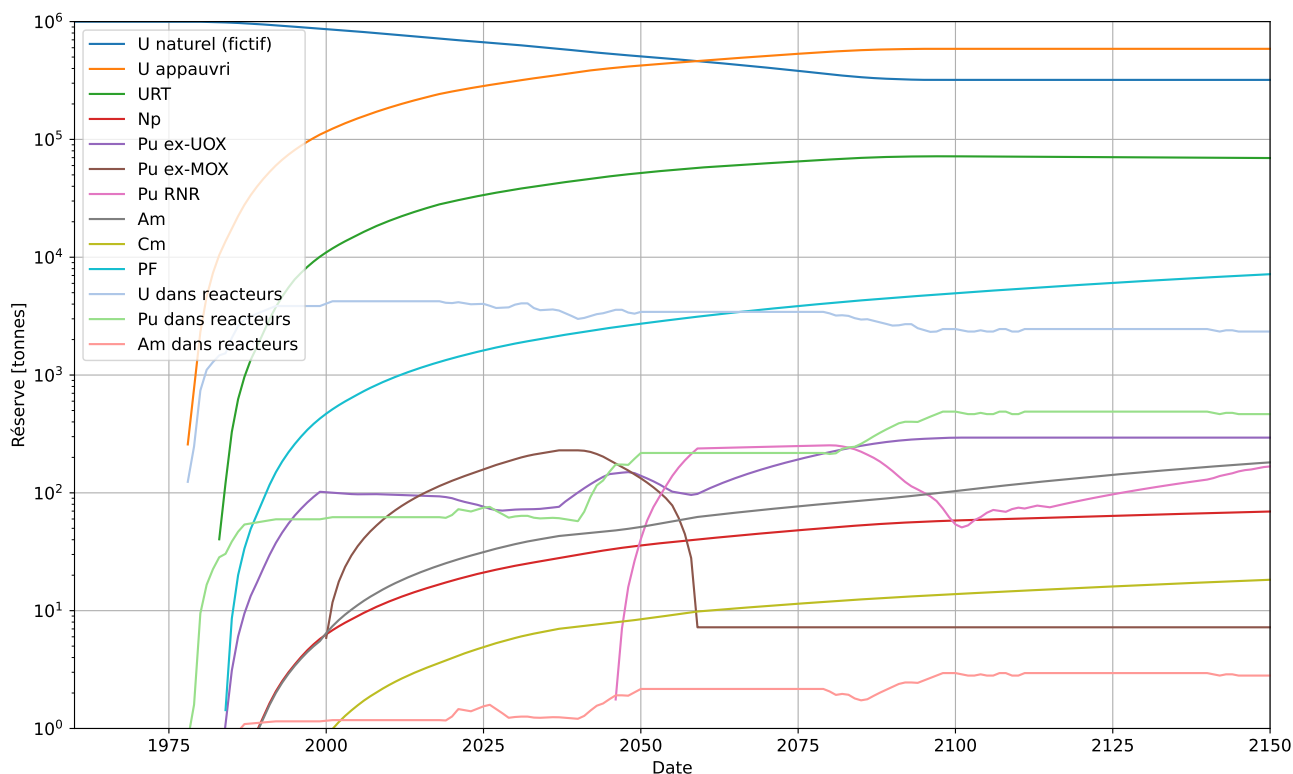


FIGURE 6.9 – Benchmark – Ressources

Date	2000	2020	2040	2080	2150
Consommation d' ^{nat}U [kt]	136,5	298	434,2	643	680
Inventaire Pu [t]	167	281	387	695	935
<i>Dans les réacteurs</i> [t]	60	64	57	213	465
Inventaire AM [t]	16	51	84	147	273
<i>Dans les réacteurs</i> [t]	2,8	3	2,7	3,8	4,1
Inventaire Am [t]	7,6	27	45	83	184
<i>Dans les réacteurs</i> [t]	1,2	1,3	1,2	2,1	2,8

TABLEAU 6.3 – Benchmark – Récapitulatif des inventaires des principales matières

Le scénario débute avec une réserve d'**uranium naturel** définie arbitrairement à 1 Mt pour ne pas être limitante au sein du scénario et permettant de suivre l'évolution de la consommation de ce parc. Plusieurs points sont intéressants à constater :

- les réserves en **plutonium ex-UOX** se stabilisent avec l'introduction de la gestion MOX en 2000 puis repartent lors du démoxage des réacteurs en 2038 ;
- les réserves en **plutonium ex-MOX** sont consommées par les RNR-Na V2b en 2060 ;
- en fin de vie, la moitié du plutonium dans le cycle est contenu dans les **réacteurs** ;
- l'actinide mineur majoritaire est l'**américium** avec 184 t dont 182 dans les **réserves disponibles**.

Enfin, un artéfact numérique simulant une usine fictive permet de convertir du plutonium ex-UOX en ex-MOX pour consolider le lancement des RNR-Na V2b transitoires. Le parc simulé est schématisé dans les figures B - 1 et B - 2 pages XVIII–XIX en annexe.

6.2.1.2 Modélisation d'ARAMIS-A pour les scénarios

Le RSF incinérateur étudié dans le cadre de ce scénario est la version V0p d'ARAMIS-A [110] présentée dans la partie 5.2.1 et dont les caractéristiques d'intérêt sont rappelées dans le tableau 6.4 [115, 118].

Caractéristique	ARAMIS-A V0p
Puissance thermique [MW_{th}]	300
Puissance électrique [MW_e]	120
Facteur de charge [%]	100
Date de mise en service	2040
Rythme de déploiement [/an]	2
Durée de vie [ans]	60

TABLEAU 6.4 – Caractéristiques pour les ARAMIS-A V0p [115, 118]

Tout comme pour l'implémentation des REP et les RNR-Na, il est nécessaire d'annualiser les bilans matières du RSF simulé avec le code REM. Mais contrairement à ces derniers, les masses alimentées et extraites dépendent du temps. La figure 6.10 montre le bilan net d'entrées/sortie en plutonium et en américium d'ARAMIS-A V0p en fonction du temps de fonctionnement du réacteur : quand celui-ci est positif, la matière est alimentée dans le réacteur et, quand il est négatif, il s'agit d'un déchargement du réacteur. Ainsi, un premier chargement de respectivement 2,8 et 3,5 t de Pu et d'Am est réalisé, suivi d'une alimentation autour de respectivement 50 et 80 kg tous les ans, pour finir par le déchargement de l'inventaire en cœur, avec respectivement 3 et 2,6 t déchargées. Tout le travail d'adaptation de ce réacteur dans les scénarios de déploiement a fait partie de l'objet du stage de deuxième année d'école d'ingénieur d'Alexandre Roth que j'ai encadré en 2024 [118] et dont provient notamment la figure 6.10.

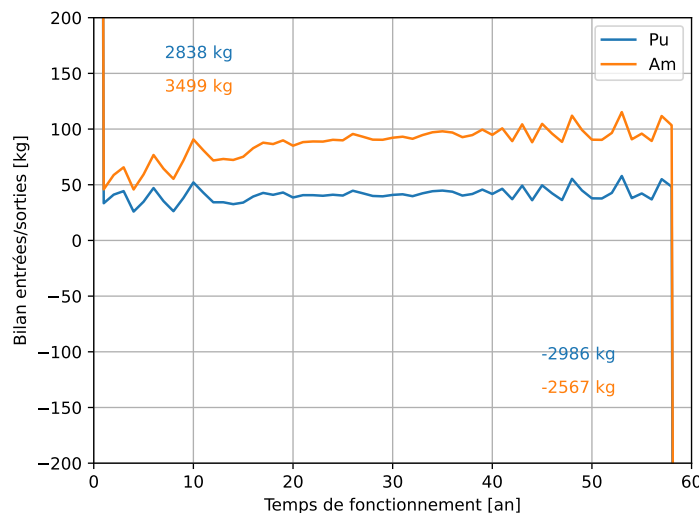


FIGURE 6.10 – Bilan des entrées/sorties en Pu et en Am pour ARAMIS-A V0p [115, 118]

Enfin, il est fait l'hypothèse que le plutonium alimenté dans les ARAMIS-A V0p provient de la réserve ex-UOX avant 2060, pendant que les RNR-Na sont alimentés avec du Pu ex-MOX, puis tous ces réacteurs utilisent du Pu RNR après 2060.

6.2.1.3 Le scénario *Benchmark* avec ARAMIS-A V0p

La figure 6.11 montre la chronologie de déploiement du scénario *Benchmark* avec l'ajout des ARAMIS-A V0p à partir de 2040. Il est possible de remarquer que la dizaine de RSF déployés, de 120 MW_e par unité, remplacent en termes de puissance électrique un RNR-Na avec le déploiement de respectivement 13 puis 41 RNR-Na V2b au lieu de 14 et 42 dans la figure 6.8. Mis à part cela, le reste du parc français est inchangé.

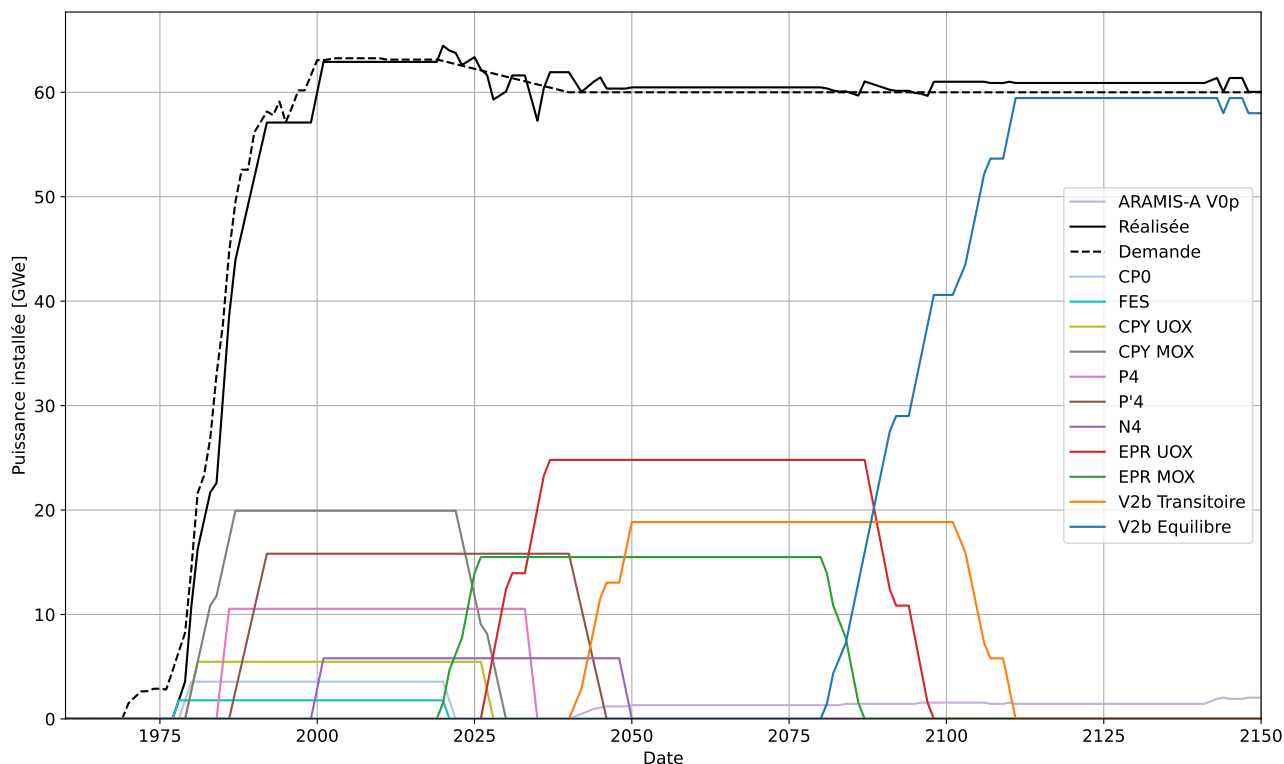


FIGURE 6.11 – Benchmark+ARAMIS-A – Déploiement du parc

Le tableau 6.5 reprend les valeurs d'intérêt du tableau 6.3 en mettant à jour les valeurs après 2040 tout en indiquant l'écart relatif avec le scénario sans RSF. La figure 6.12, quant à elle, compare les réserves totales en américium dans les deux scénarios.

Date	2000	2020	2040	2080	[%]	2150	[%]
Consommation d' ^{nat} U [kt]	136,5	298	434,2	643	0	680	0
Inventaire Pu [t]	167	281	387	677	-2,5	877	-6,2
Dans les réacteurs [t]	60	64	57	235	10	493	5,8
Inventaire AM [t]	16	51	84	109	-25,7	155	-43
Dans les réacteurs [t]	2,8	3	2,7	35	819	54	1224,9
Inventaire Am [t]	7,6	27	45	40	-51,6	51	-72,2
Dans les réacteurs [t]	1,2	1,3	1,2	31	1421	50	1702

TABEAU 6.5 – Benchmark+ARAMIS-A – Récapitulatif des inventaires des principales matières

Le déploiement de 12 ARAMIS-A mobilise une partie du plutonium dont les réserves baissent de respectivement 2,5 % et 6,2 % en 2080 et à la fin de jeu du scénario (date à laquelle la simulation s'arrête) sans que cela n'impacte la gestion par le parc de RNR-Na. Cette mobilisation se traduit également par l'augmentation de l'ordre de 10 % puis de 6 % de la masse en réacteurs du fait de leur alimentation dans les RSF. Les AM

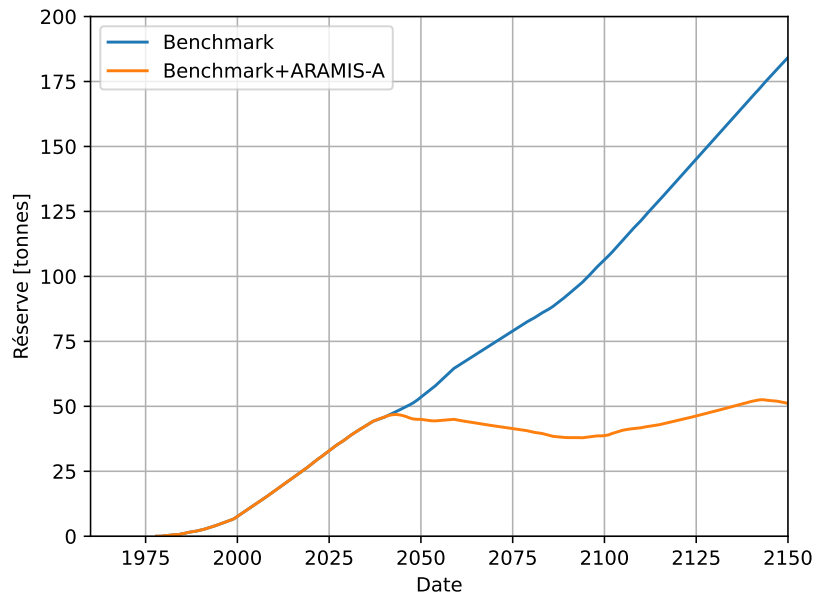


FIGURE 6.12 – Benchmark+ARAMIS-A – Réserve en américium

voient leur inventaire baisser de 40 % en fin de jeu et en particulier l'américium atteint 72 % de réduction. En revanche, l'inventaire des AM présents dans les réacteurs augmente fortement puisque ces derniers sont systématiquement sortis des réacteurs dans les scénarios sans RSF. La figure 6.12 montre que le déploiement des ARAMIS-A stabilise l'inventaire total en américium entre 40 et 50 tonnes tout au long du xxi^e siècle et dans la première moitié du $xxii^e$ siècle, soit une diminution de 72,2 % de la masse. La figure 6.13 explicite la répartition de l'américium entre les réserves disponibles et celui présent dans les réacteurs avec superposé le nombre d'unités incinératrices déployées. Il est à noter que ce scénario fait l'hypothèse forte que la séparation poussée des actinides mineurs est réalisée dès le début du scénario.

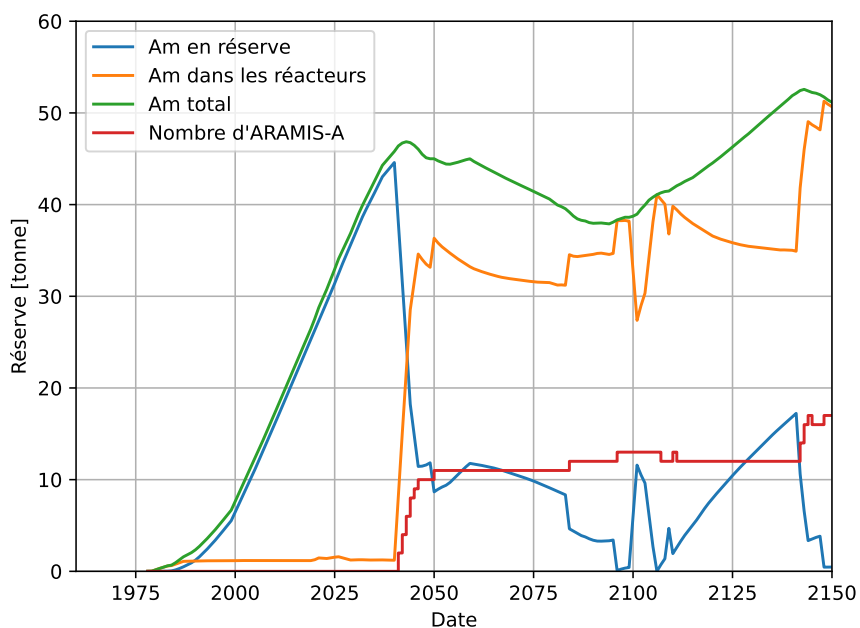


FIGURE 6.13 – Benchmark+ARAMIS-A – Répartition des réserves en américium

Plusieurs remarques :

- le code ISF déploie les **ARAMIS-A** à partir de 2041 en transférant près de 80 % des **réserves** en américium **dans les réacteurs**, ce transfert suivant la chronologie de déploiement des RSF (voir les marches présentes en 2084 et 2096) ;
- les ARAMIS-A ayant une durée de vie de 60 ans, la première génération s'arrête à partir de 2101, coïncidant avec la fin des premiers RNR-Na V2b et provoquant la première hausse d'américium en réserve suite au déchargement de ces réacteurs ;
- cette hausse est directement compensée par le démarrage de la seconde génération d'ARAMIS-A ;
- enfin, une troisième génération est démarrée à partir de 2140, juste avant la fin du jeu, pour consommer l'américium produit par le parc de RNR-Na V2b.

L'objectif de stabilisation des réserves d'américium est atteint dans le cadre de ce scénario ayant servi de *Benchmark* pour le projet ISAC : l'américium, produit à hauteur de quasiment 200 t à l'horizon 2150, est mobilisé dans un parc contenant une douzaine de RSF incinérateurs. Cela confère deux avantages corrélés :

- la réduction de l'inventaire en américium en cycle et voué à être conditionné dans les verres en vue d'un stockage définitif dans un parc sans RSF — et donc, en actinides mineurs — qui induit donc la réduction directe de l'empreinte à l'entreposage voire au stockage définitif d'une part ;
- la requalification de l'américium de déchet à matière radioactive grâce au déploiement des RSF, allant également dans le sens de la réduction de l'inventaire envoyé au stockage définitif d'autre part.

Cette stratégie demande ainsi de déployer 12 réacteurs à sels fondus en 2050, représentant 2,4 % de la production électrique française. Ce scénario, non réaliste sur les hypothèses de déploiement du parc d'EPR, ne permet pas de poser la question de la crédibilité d'un tel déploiement de réacteurs dont la technologie n'est pas encore mature. De plus, il serait envisageable de penser que le déploiement d'AMR à sels fondus de petites puissances n'aurait pas pour vocation première la gestion de l'américium.

6.2.2 Le scénario *TerraWater*

Le scénario *TerraWater* propose une trajectoire actualisée de l'évolution du parc français. Certains éléments et certaines hypothèses sont reprises du scénario *Benchmark* avec toutefois quelques adaptations :

- le parc historique est prolongé entre 60 et 71 ans en fonction des paliers (voir tableau 6.2) et conserve leur gestion historique ;
- les gestions MOX perdurent tant que les réacteurs concernés fonctionnent ;
- les EPR ne fonctionnent qu'avec du combustible UNE et sont les seuls à utiliser la gestion GALICE ;
- les RNR-Na simulés sont toujours les RNR-Na V2b et la date de passage entre la phase transitoire et la mise à l'équilibre est fixée à 2072, soit 20 ans après le début de leur déploiement ;
- en revanche, les ARAMIS-A V0p, voués à la gestion de l'inventaire en américium, sont tout de même déployés à partir de 2040. Il s'agit d'une hypothèse forte mais pas nécessairement irréaliste au vu du regain d'intérêt que présente cette technologie (voir section 2.3.3.3).

La figure 6.14 montre la chronologie de déploiement de ce parc. Il est à noter que la courbe de demande n'est pas réalisée entre 2050 et 2075 du fait de l'absence dans cette simulation des réacteurs SMR et AMR prévus par le scénario original [173]. Ces réacteurs sont compensés par la deuxième vague de **RNR-Na V2b** démarrée à partir de 2072 : le scénario *TerraWater* s'arrêtant en 2070, ce second parc est là pour maintenir la puissance installée constante. La figure 6.15 montre la nouvelle chronologie avec le déploiement des ARAMIS-A V0p.

Le nombre d'unités démarrées se stabilise autour de 15 à partir de 2072 et atteint 20 en fin de jeu. La figure 6.16 montre les réserves en tonnes des différentes matières en fonction du temps et le tableau 6.6 explicite quelques valeurs pour le scénario avec les ARAMIS-A ainsi que les écarts par rapport au scénario sans RSF après 2040.

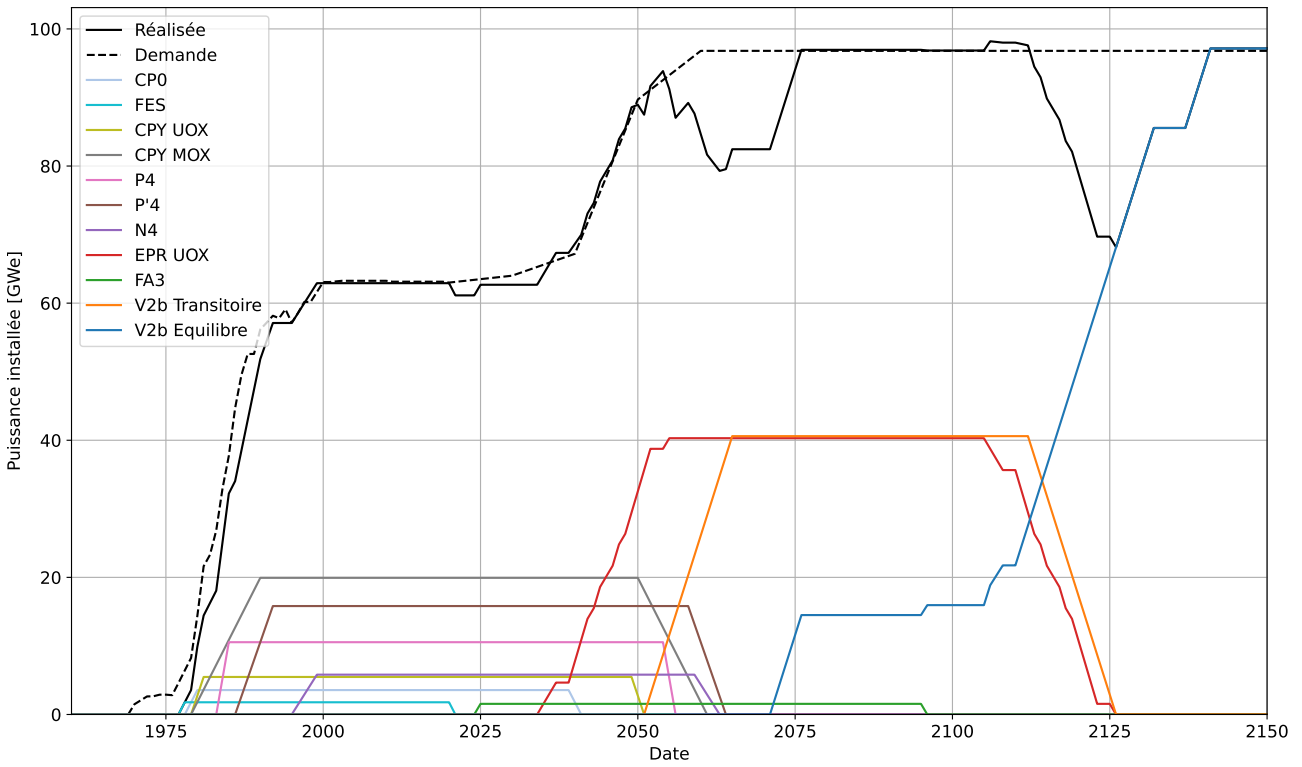


FIGURE 6.14 – TerraWater – Déploiement du parc

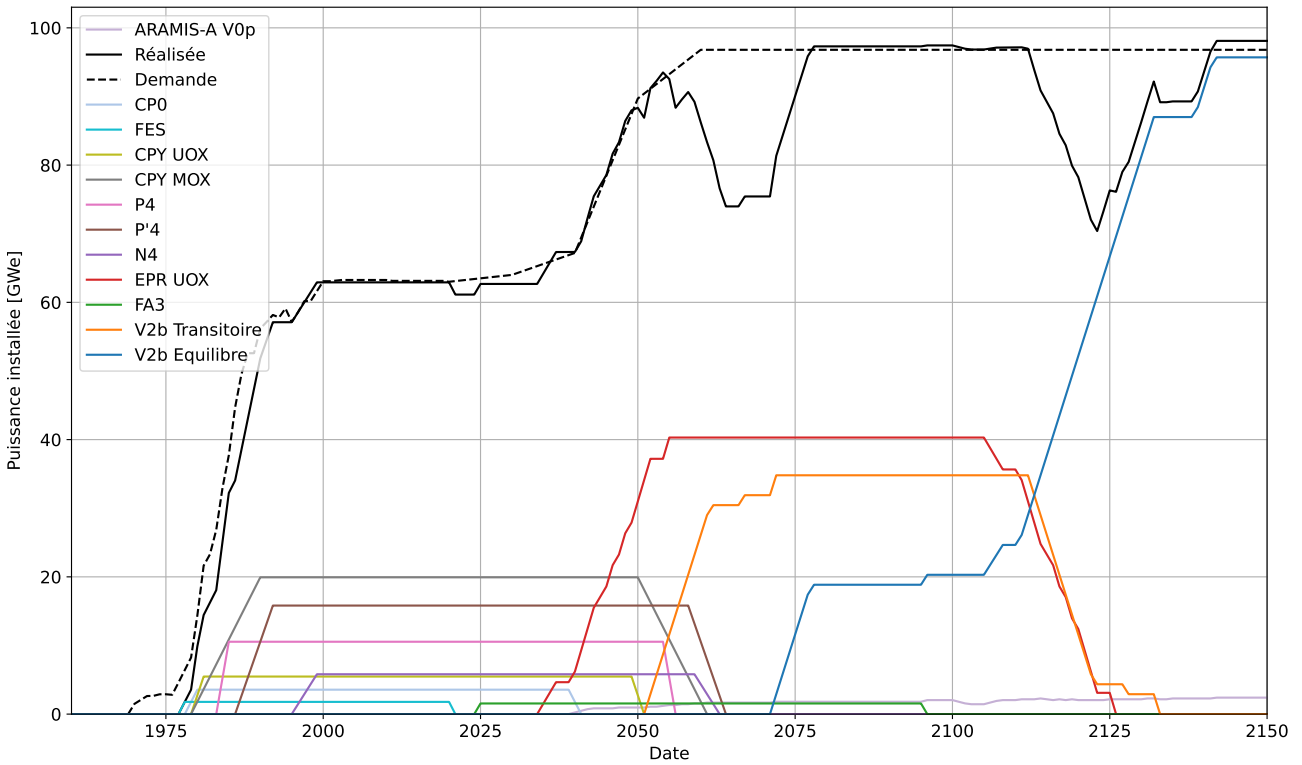


FIGURE 6.15 – TerraWater+ARAMIS-A – Déploiement du parc

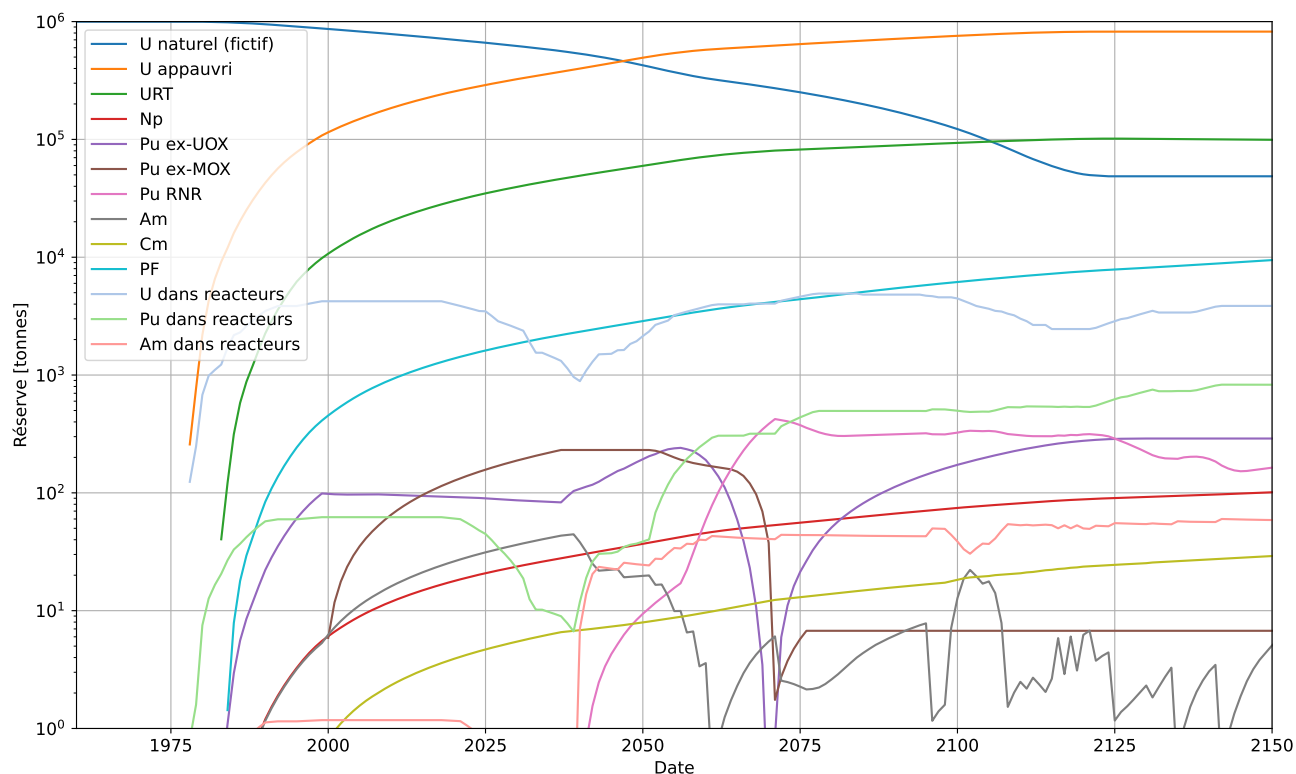


FIGURE 6.16 – TerraWater+ARAMIS-A – Ressources

Plusieurs remarques sont possibles à ce stade :

- la date de 2072 pour l'utilisation du Pu RNR pour les RNR-Na V2b et les ARAMIS-A permet de consommer les plutonium ex-UOX et ex-MOX, même si l'ex-UOX continue d'être produit par les derniers EPR ;
- l'américium dans le cycle est transféré dans les 16 ARAMIS-A en 20 ans ;
- l'écart entre l'inventaire en américium avec et sans RSF incinérateurs est quasiment identique à celui du scénario *Benchmark* malgré des valeurs absolues différentes.

Date	2000	2020	2040	2080	[%]	2150	[%]
Consommation d' ^{nat} U [kt]	347,1	298,4	465,8	774,8	-0,3	951,4	0
Inventaire Pu [t]	165	279	351	861	-1,7	1288	-4,8
<i>Dans les réacteurs</i> [t]	62	60	11	495	7,1	828	6,2
Inventaire AM [t]	16	50	82	124	-27,1	200	-43
<i>Dans les réacteurs</i> [t]	2,9	2,8	7,4	49	788,9	64	821,5
Inventaire Am [t]	7,4	27	45	46	-52,6	63	-73,2
<i>Dans les réacteurs</i> [t]	1,2	1,2	7	43	1367	58	1131,4

TABLEAU 6.6 – TerraWater+ARAMIS-A – Récapitulatif des inventaires des principales matières avec écart relatif par rapport au scénario sans RSF

Enfin, la figure 6.17 montre les réserves totales d'américium dans le scénario *sans* et *avec* ARAMIS-A.

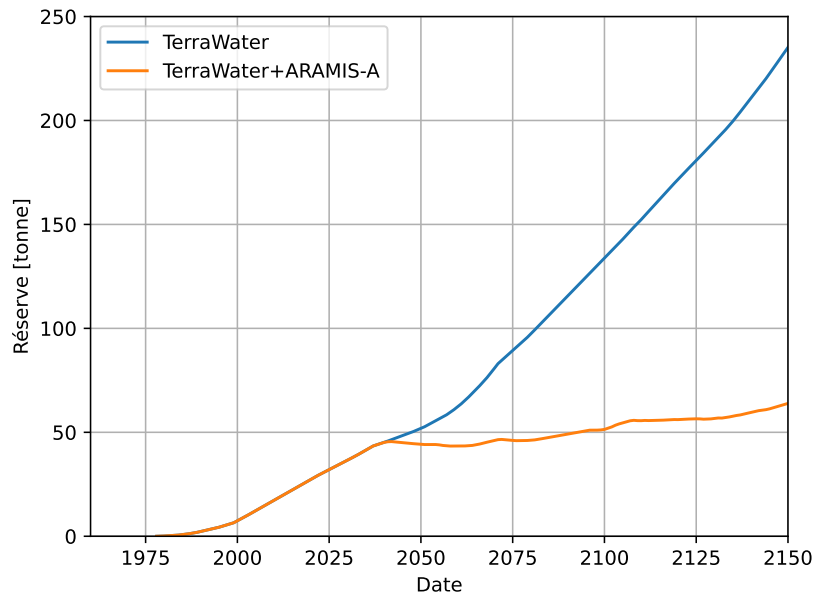


FIGURE 6.17 – TerraWater+ARAMIS-A – Réserve en américium

L'inventaire en américium arrête subitement de croître à partir de 2040, comme dans le scénario *Benchmark*, et accuse même une très légère baisse de quelques tonnes pendant une vingtaine d'années. Cependant, celle-ci recommence tout de même de croître à raison d'environ 240 kg/an à partir de 2080. Cette hausse correspond en ordre de grandeur à la consommation annuelle de deux ARAMIS mais cela ne signifie pas que les réserves disponibles permettent de les démarrer, étant donnée la première alimentation de 3,5 t (voir figure 6.10), ni même que le code puisse les démarrer étant donné que la demande de puissance installée est satisfaite. Ainsi, la charge initiale dans les RSF semble apparaître comme un facteur limitant dans le déploiement de ceux-ci. L'inventaire en américium est toutefois réduit de 73 % et plus important encore, plus de 90 % des matières sont mobilisées dans des réacteurs, leur permettant ainsi d'échapper à l'étiquetage de déchets nucléaires. Cette réduction demande le déploiement de 15 RSF entre 2040 et 2070 représentant environ 2 % de la puissance électrique installée. Cependant, la progression de la courbe d'installation est plus douce que pour le scénario *Benchmark*. Même s'il n'est pas possible de prédire si le démarrage de ce type de réacteur sera possible d'ici à 2040, le déploiement plus progressif invite à considérer ce scénario comme étant plus réaliste, laissant un peu plus de marge de manœuvre pour *in fine* déployer un parc contenant une quinzaine d'unités au dernier quart du siècle.

6.2.3 Un scénario alternatif au *benchmark* ISAC et une relation symbiotique avec les REP

6.2.3.1 Mise en contexte et hypothèses sur le parc

Dans les scénarios présentés jusqu' alors, la gestion du plutonium est réalisée dans un premier temps par les REP, avec 22 CPY et 10 EPR moxés à 30 %, puis dans un second temps par les RNR-Na isogénérateurs. Ces derniers sont démarrés avec le plutonium ex-MOX produit par les REP permettant d'une part de valoriser cette ressource et, d'autre part, de régénérer suffisamment de plutonium appelé « RNR » pour être autonome à l'échelle du parc. Pour ce faire, la date de début de déploiement du parc de RNR-Na coïncide avec la date de fin de la gestion MOX en REP. Mais que pourrait-il se passer si la gestion MOX n'est pas arrêtée et comment utiliser ce plutonium ?

Une première étude sur le concept ARAMIS-B a été réalisée pour ajouter une couverture fertile à l'esquisse ARAMIS-A, voir section 5.3. Le comportement incinérateur d'américium de l'esquisse mère a été conservé et

l'ajout de la couverture a pour objectif de convertir du plutonium ex-MOX en plutonium ayant une qualité fissile similaire à celle de l'ex-UNE. Deux hypothèses conditionnent cette étude : premièrement, la volonté de poursuivre le chargement de combustible MOX dans les REP et, deuxièmement, le combustible produit dans la couverture des ARAMIS-B est utilisé pour fabriquer du combustible REP MOX neuf.

6.2.3.2 Modélisation d'ARAMIS-B pour les scénarios

À l'instar d'ARAMIS-A (voir section 6.2.1.2), il est nécessaire d'adapter les résultats des évolutions réalisées avec le code REM pour l'implémentation du réacteur dans les scénarios produits avec le code ISF. Le tableau 6.7 présente les caractéristiques d'intérêt d'ARAMIS-B.

Caractéristique	ARAMIS-B
Puissance thermique [MW_{th}]	360
Puissance électrique [MW_e]	144
Facteur de charge [%]	100
Date de mise en service	2040
Rythme de déploiement [/an]	2
Durée de vie [ans]	60

TABLEAU 6.7 – Caractéristiques pour les ARAMIS-B

L'esquisse présentée dans la section 5.3 produit du plutonium de bonne qualité, appelé « Pu B », et qui est mélangé au plutonium ex-MOX d'entrée pour produire le plutonium équivalent au plutonium ex-UNE. Pour des raisons de simplification, le réacteur simulé dans les scénarios intègre ce processus directement en son sein. La figure 6.18 présente ainsi une illustration des entrées et des sorties en plutonium pour ARAMIS-B modélisées dans ISF comme étant l'encadré en traitillés. Les flux de matières à l'intérieur de cet encadré sont calculés en amont de la simulation avec les données de la simulation REM.

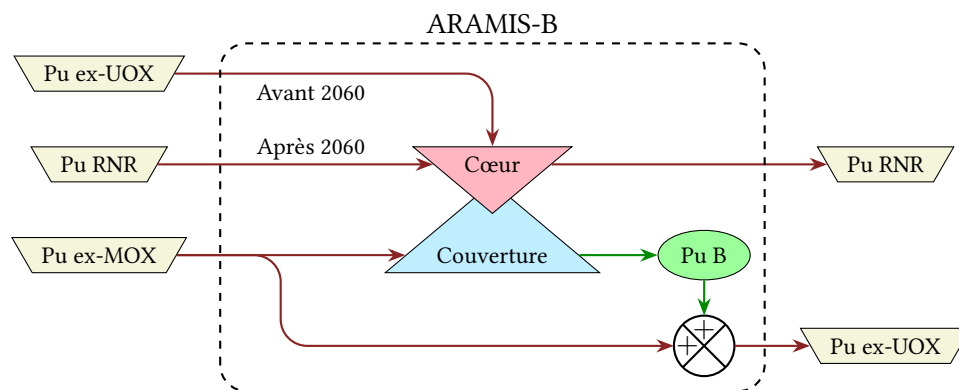


FIGURE 6.18 – Illustration du cycle du plutonium interne d'ARAMIS-B modélisé dans ISF

6.2.3.3 Le scénario Benchmark avec ARAMIS-B

La figure 6.19 montre la chronologie de déploiement du scénario *Benchmark* avec la poursuite de la gestion MOX après 2040 et le déploiement des ARAMIS-B à partir de cette même date. Il est possible de remarquer que la première vague d'ARAMIS-B contient 13 unités contre 12 pour le scénario avec ARAMIS-A. Cependant, et contrairement à ce dernier, la deuxième vague de déploiement – à partir de 2100 – n'excède pas les 5 unités contre 16 ARAMIS-A. Cela s'explique par l'arrêt des REP – et donc de la production de Pu ex-MOX – avant cette date.

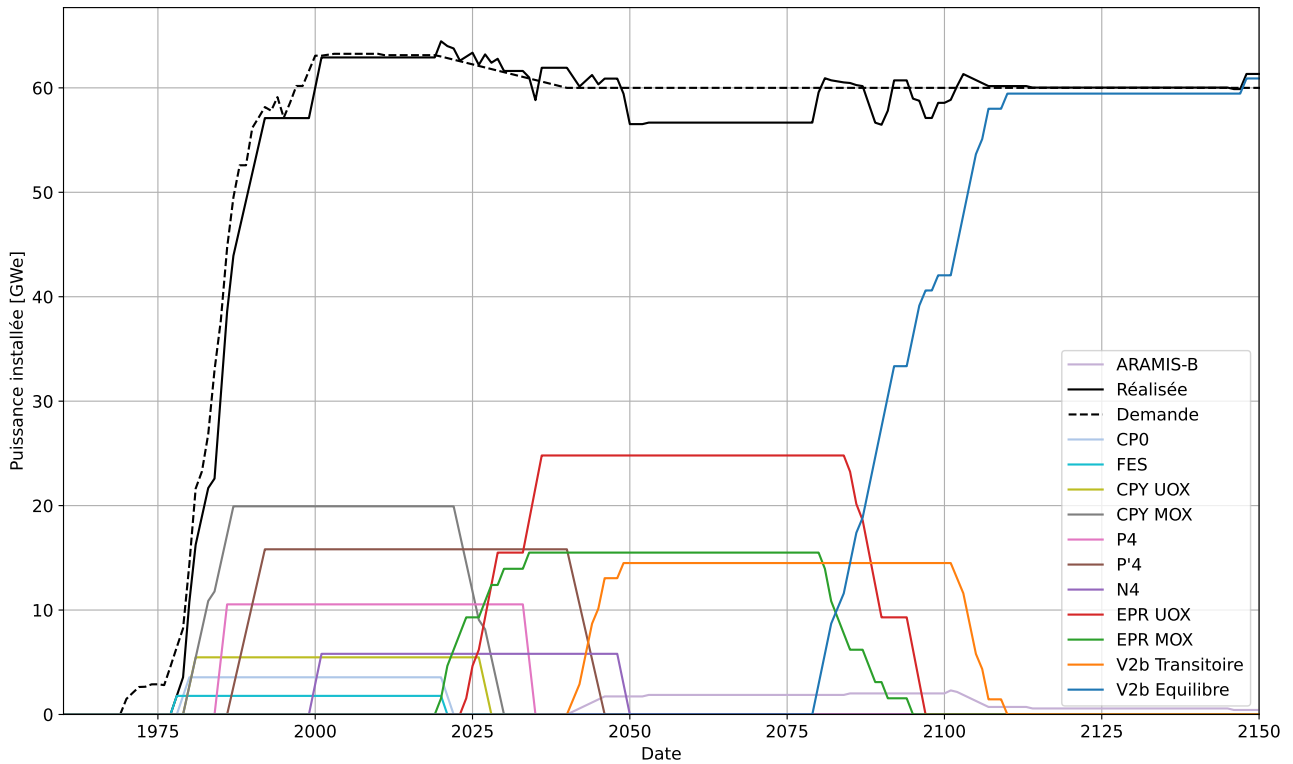


FIGURE 6.19 – Benchmark+ARAMIS-B – Déploiement du parc

Cette dizaine d'ARAMIS-B consomme chaque année la quantité de plutonium ex-MOX équivalente à celle alimentant un RNR-Na V2b transitoire. Cependant, ces RNR-Na V2b ne sont alimentés en Pu ex-MOX que durant 20 ans maximum, entre 2040 et 2060 tandis que les ARAMIS-B ont une durée de vie de 60 ans. Le fonctionnement intrinsèque du code ISF contraint le démarrage d'un réacteur à la disponibilité des ressources nécessaires pour la totalité de la vie du réacteur (voir section 3.4.2). Ainsi, le déploiement de ce parc d'ARAMIS-B contraint de diminuer le nombre de RNR-Na V2b transitoires démarrés de 13 dans le scénario de référence à 10 unités ici, ces 3 unités correspondant aux $3 \times 20 = 60$ ans d'américium consommés par les ARAMIS-B.

La figure 6.20 montre les réserves des différentes ressources d'intérêt en fonction du temps et le tableau 6.8 récapitule les inventaires en américium pour les trois scénarios du *Benchmark* présentés avec l'écart relatif après 2040 par rapport au scénario initial sans incinérateur.

Scénario	2000	2020	2040	2080	2150
<i>Benchmark</i>	7,6	27	45	83	184
<i>Benchmark</i> +ARAMIS-A	7,6	27	45	40	51
Écart par rapport au <i>Benchmark</i> [%]				-51,6	-72,2
<i>Benchmark</i> +ARAMIS-B	7,6	27	45	54	110
Écart par rapport au <i>Benchmark</i> [%]				-34,9	-40,2

TABLEAU 6.8 – Récapitulatif des inventaires en américium dans les différents scénarios du *Benchmark* (en tonnes)

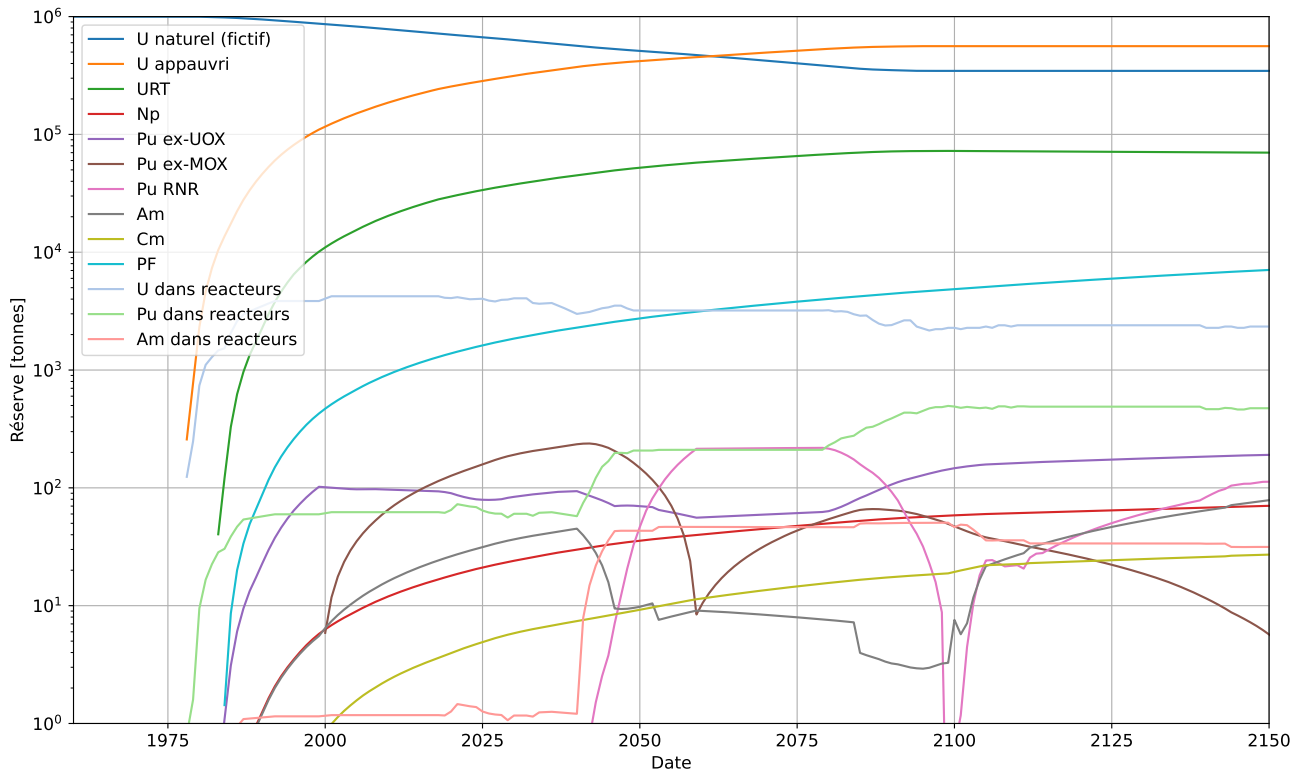


FIGURE 6.20 – Benchmark+ARAMIS-B – Ressources

Plusieurs conclusions sont possibles à ce stade :

- la quantité de Pu RNR produite en 2060 par le parc de RNR-Na V2b transitoires est plus faible que dans le scénario de référence (215 t par rapport à 242 t) et cette différence d'une trentaine de tonnes se retrouve dans la quantité de ce même plutonium en 2100, date à laquelle les RNR-Na V2b transitoires commencent à être arrêtés (et dont le déchargement vient alimenter de nouveau la réserve);
- les réserves en américium sont réduites par rapport au scénario de référence mais les quantités augmentent de nouveau à partir de 2100, date à laquelle les ARAMIS-B commencent à épuiser les réserves en Pu ex-MOX.

Une première conclusion partielle pourrait être à ce stade de réintroduire des ARAMIS-A en complément des ARAMIS-B pour terminer la gestion de l'américium en fin de jeu, objet de la section suivante.

6.2.3.4 Le scénario *Benchmark* avec un parc hybride d'ARAMIS-B et d'ARAMIS-A

La figure 6.21 montre la chronologie de déploiement du parc contenant conjointement des ARAMIS-A V0p et des ARAMIS-B à partir de 2040. Le nombre total d'ARAMIS déployés lors de la première vague est de 13, réparti en 4 ARAMIS-A et 9 ARAMIS-B, et atteint 16 en fin de jeu, répartis en 11 ARAMIS-A et 5 ARAMIS-B, ce qui correspond au nombre d'unités déployées dans le scénario ne contenant que des ARAMIS-A. La baisse d'un tiers du nombre d'ARAMIS-B libère le plutonium ex-MOX nécessaire au démarrage d'un RNR-Na V2b transitoire dont le parc passe de 10 à 11. La figure 6.22 compare les réserves totales en américium dans les quatre scénarios du *Benchmark*.

Du point de vue strict de la stabilisation de la réserve en américium, le scénario déployant des ARAMIS-B et des ARAMIS-A conserve respectivement 26 et 31 % d'américium en plus en 2080 et 2150 dans les réserves que le scénario ne déployant que des ARAMIS-A. Cela représente tout de même une baisse de 63,6 % par rapport au scénario de référence sans incinérateurs. L'objectif de stabilisation de l'américium est donc atteint avec ce scénario.

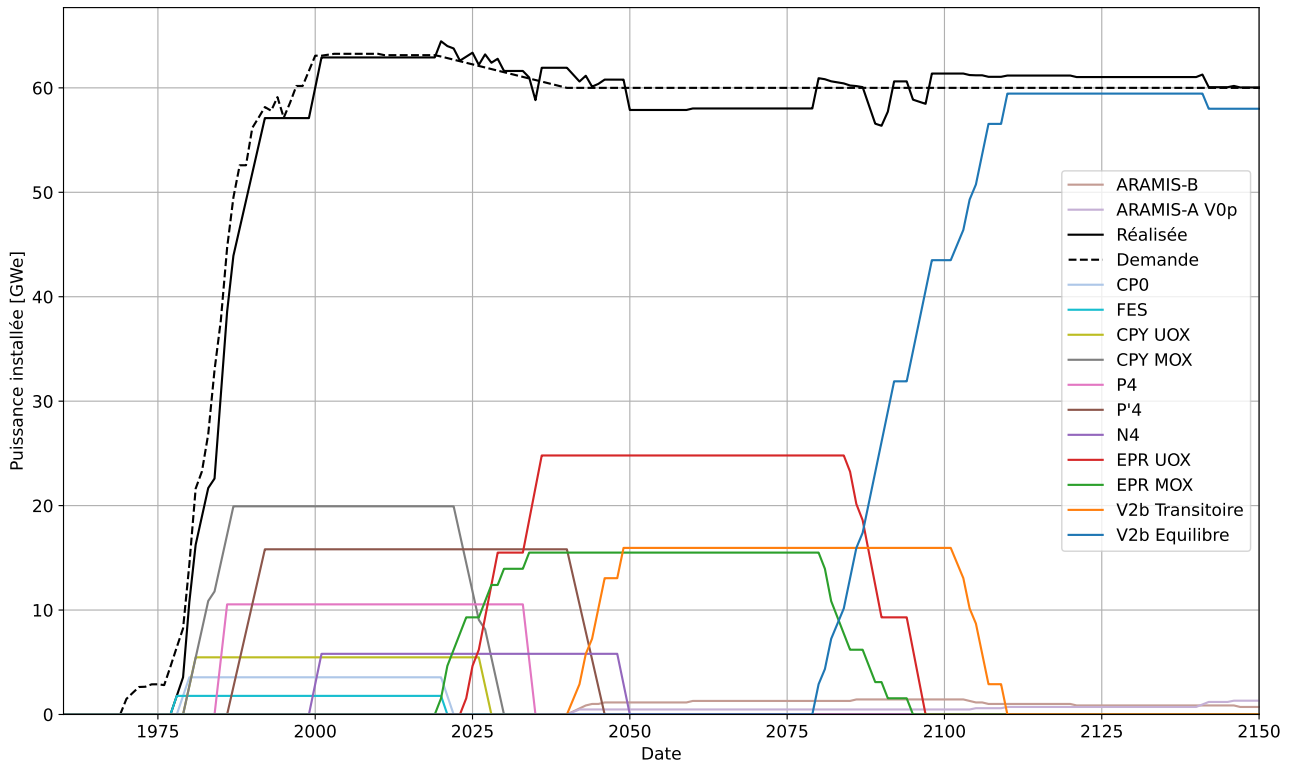


FIGURE 6.21 – Benchmark+ARAMIS-B+ARAMIS-A – Déploiement du parc

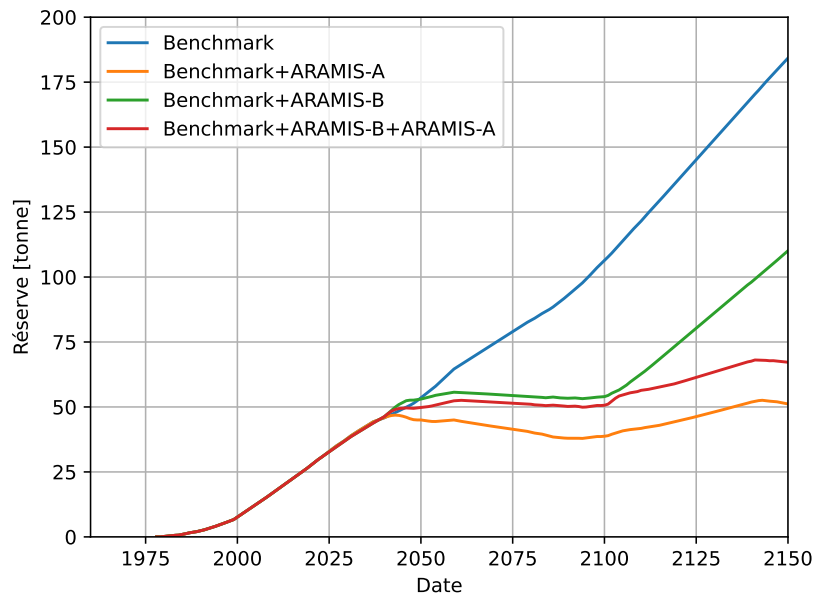


FIGURE 6.22 – Benchmark+ARAMIS-B+ARAMIS-A – Réserve en américium

La figure 6.23 compare quant à elles les réserves totales en plutonium dans ces quatre scénarios tandis que le tableau 6.9 indique la consommation finale en uranium naturel ainsi que les inventaires en plutonium et en américium en 2150.

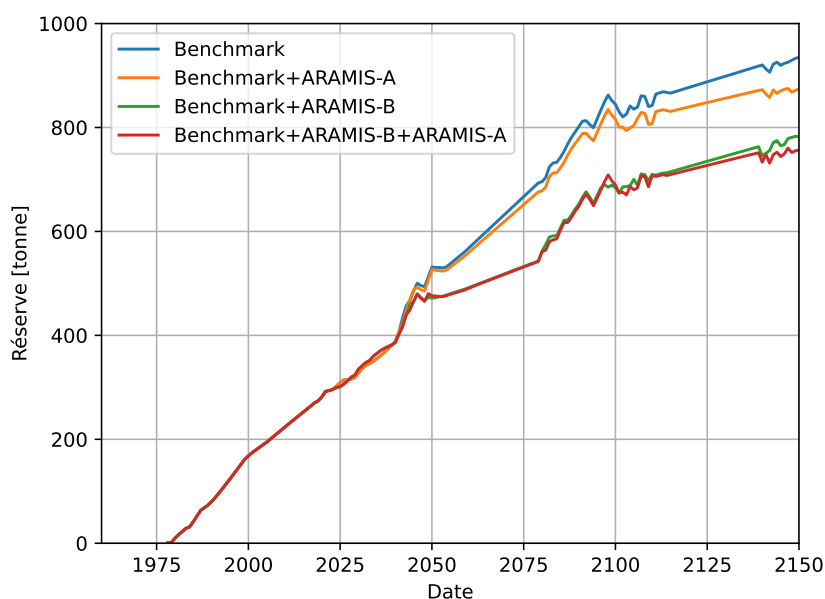


FIGURE 6.23 – Benchmark+ARAMIS-B+ARAMIS-A – Réserve en plutonium total

Scénario	Consommation ^{nat} U	Réserve Pu	Réserve Am
<i>Benchmark</i>	679,9 kt	935 t	184,3 t
<i>Benchmark+ARAMIS-A</i>	679,9 t	877,2 t	50,9 t
Écart par rapport au <i>Benchmark</i> [%]	0	-6,2	-72,4
<i>Benchmark+ARAMIS-B</i>	653,9 kt	783,3 t	111,3 t
Écart par rapport au <i>Benchmark</i> [%]	-3,8	-16,2	-39,6
<i>Benchmark+ARAMIS-B+ARAMIS-A</i>	653,9 kt	757,8 t	67 t
Écart par rapport au <i>Benchmark</i> [%]	-3,8	-18,9	-63,6

TABLEAU 6.9 – Récapitulatif de la consommation finale en uranium naturel et des inventaires finaux en plutonium et américium dans les différents scénarios du Benchmark

La stratégie de conversion du plutonium ex-MOX dans les ARAMIS-B permet de baisser les réserves totales de plutonium entre 16 et 19 % en 2150 tandis que la prolongation de la gestion MOX pour les REP permet de baisser de 4 % la consommation en uranium naturel. Cette baisse correspond à 26 000 tonnes d'uranium naturel, soit l'équivalent d'environ 200 années-réacteur (ar) pour des CPY UOX d'économisé ou encore 140 ar pour des EPR UOX.

Cette première étude incite au développement d'un réacteur dont l'objectif principal serait la conversion de plutonium (et non un objectif secondaire comme dans le cas d'ARAMIS-B) pour tendre à un parc symbiotique consommant tout le plutonium des REP moxés.

À retenir (6.2)

Le déploiement du réacteur incinérateur d'américium ARAMIS-A V0p permet de stabiliser les réserves en américium dans les deux scénarios de déploiement en réduisant de presque trois quarts l'inventaire produit par le parc historique et sa prolongation en considérant l'hypothèse de séparation poussée des actinides. Le déploiement conjoint du réacteur incinérateur d'américium et convertisseur de plutonium ARAMIS-B permet non seulement de stabiliser les réserves en américium en les réduisant de deux tiers, mais permet également la prolongation de la gestion MOX en REP et l'économie de 26 kt d'uranium naturel d'ici à la fin du siècle.

Conclusion du chapitre

L'objectif visé dans cette étude de scénario d'un réacteur incinérateur d'américium est de stabiliser l'inventaire de celui-ci dans un parc de réacteurs gérant par ailleurs le plutonium. Deux scénarios prolongeant le parc français historique ont été simulés : un scénario appelé *Benchmark* ISAC dans lequel la puissance installée, constante, se partage entre des EPR et des RNR-Na, et un scénario inspiré de *TerraWater* faisant l'hypothèse d'une relance forte du nucléaire en France. L'incinérateur ARAMIS-A dans sa version V0p a ensuite été déployé. Les réserves en américium se stabilisent dans ces deux scénarios : passant de respectivement 184 et 235 t en 2150 à respectivement 50 et 63 t à cette même date, soit une baisse de 72 % dans les inventaires avec le déploiement de respectivement 12 et 15 unités. Cette baisse, rendue possible par la mobilisation de l'américium dans des RSF, permettrait de réduire l'empreinte au stockage dans des projets type Cigéo. Enfin, dans une dernière catégorie de scénarios, l'esquisse alternative ARAMIS-B a été déployée conjointement à ARAMIS-A. Ce déploiement réduit légèrement les performances de stabilisation des réserves en américium, avec une baisse de 64 % de ces réserves, mais permet la prolongation de la gestion MOX en REP tout en économisant 26 kilotonnes d'uranium naturel soit environ 4 % de la consommation à la fin du siècle. Le développement d'un réacteur convertisseur de plutonium provenant de combustible MOX utilisé pourrait être intéressant pour réduire encore la consommation d'uranium naturel du parc de réacteurs.

Conclusion générale et perspectives

Conclusion générale

Le travail réalisé au cours de cette thèse a principalement été axé autour de la simulation neutronique en évolution de réacteurs à sels fondus incinérateurs d'actinides mineurs de moyenne puissance afin d'optimiser les performances. L'intégration de ces derniers dans des scénarios de déploiement de parcs électronucléaires a permis par ailleurs d'évaluer les synergies potentielles avec des stratégies réacteurs dédiées à la gestion du plutonium. Ces réacteurs sont des cas particuliers de réacteurs à sels fondus à combustible liquide circulant, une technologie étudiée au CNRS depuis plus de 25 ans, notamment au LPSC de Grenoble. Les propriétés de ce type de combustible impliquent une adaptation des outils de simulation classiques rencontrés dans le domaine de la physique des réacteurs nucléaires car les échanges de matières entre le système et l'extérieur sont fréquents, voire continus, changeant de ce fait le paradigme de simulation dans les codes. En particulier, la modélisation de stratégies d'alimentation en continu et durant l'opération du réacteur nécessite un contrôle fin des propriétés physicochimiques du sel combustible et de l'ajustement de ces alimentations. Cela pourrait se rapprocher d'un contrôle fin et continu du niveau de bore dans un REP mais ici les échanges entre le système et l'extérieur concernent directement le combustible. La compréhension profonde de ces interactions avec l'extérieur permet d'améliorer leur représentation et donc la stabilité de la modélisation du système. *In fine*, cela autorise une meilleure intégration des RSF étudiés dans des scénarios de déploiement permettant d'analyser les capacités d'incinération de ces concepts non plus à l'échelle du réacteur seul, mais dans ses interfaces avec les autres technologies de réacteurs permettant de conclure sur les performances du parc à gérer conjointement le plutonium et l'américium.

Ces travaux se sont tenus dans le cadre d'une collaboration entre le CNRS et le groupe Orano avec des réalisations au sein du projet national ISAC, cofinçant la thèse, et du projet européen MIMOSA. L'un des objectifs du projet ISAC était l'étude des performances neutroniques de l'esquisse incinératrice d'américium ARAMIS-A ainsi que de l'impact sur l'inventaire en actinides mineurs en cycle de son déploiement au sein d'un parc de réacteurs reposant sur une modélisation du parc français. Ces points ont été abordés durant ces travaux avec la simulation de différentes versions du réacteur ARAMIS-A permettant de quantifier les sensibilités de l'incinération de l'américium dans ce concept en fonction de différents paramètres géométriques ou de variations de matériaux. L'intégration d'ARAMIS-A dans des scénarios faisant l'hypothèse d'une relance de l'énergie électronucléaire en France a permis d'évaluer le nombre de RSF à déployer pour gérer l'américium en complément de la gestion du plutonium dans une strate REP-RNR-Na. Le projet MIMOSA, quant à lui, visait à étudier la potentialité de stratégies de multirecyclage des combustibles usés des réacteurs à eau légère via l'utilisation de technologies de réacteurs à sels fondus à l'échelle européenne. La simulation de différentes versions du concept RAPTOR, développé par le CNRS et Orano, a pu être réalisée pour fournir des données d'entrée aux différents groupes de travail du projet en plus d'étudier des sensibilités autour de la puissance thermique ou de l'isotope de l'alimentation en combustible sur la production d'actinides mineurs.

Ces projets s'intègrent dans une réflexion plus globale concernant l'avenir du cycle du combustible — en

particulier le cycle français — et la gestion des matières radioactives dont le statut juridique est lié aux choix technologiques considérés. En France, le plutonium n'est pas un déchet, étant donnée la mise en œuvre d'une stratégie de monorecyclage dans les réacteurs actuels et des stratégies de multirecyclage prévues dans le futur. La radiotoxicité des déchets radioactifs est donc dominée par les actinides mineurs et en particulier par l'américium, ce qui rend pertinentes les études sur leur éventuelle incinération et dont les projets encadrant cette thèse ont cherché à mesurer les performances en utilisant des technologies de réacteurs à sels fondus. Ces réflexions ont conclu le chapitre 1.

Cet objectif a nécessité dans un premier temps d'avoir une bonne compréhension de certaines notions physicochimiques nécessaires à l'élaboration d'un schéma de traitement des produits de ces réacteurs. Ce travail a abouti à la mise à jour du schéma utilisé dans le cadre de l'étude des réacteurs à sels chlorures pour prendre en compte la présence de magnésium et de son potentiel rédox proche de celui des actinides, compliquant son extraction pour réinjection dans le sel. Ce nouveau schéma a également mis en évidence une nouvelle phase présente dans le circuit combustible avec les produits de fission métalliques sous forme liquide et qu'il sera nécessaire de mieux identifier à l'avenir. Ces notions ont été présentées dans le chapitre 2.

Ces propriétés propres aux réacteurs à sels fondus à combustible liquide circulant, ajoutées aux notions classiques de physique des réacteurs nucléaires et de neutronique, ont mené dans un second temps à s'intéresser à la modélisation de l'évolution des matières dans le sel combustible. Ces calculs neutroniques en évolution ont été réalisés avec le code REM, code de référence pour les RSF. Les spécificités inhérentes aux réacteurs incinérateurs à sels chlorures et de petite taille ont mis en évidence des instabilités inhérentes à la méthode de calcul des alimentations implémentée historiquement dans le code. Un travail de recherche approfondi dans les sources du code en a permis une compréhension fine et la réalisation d'une description détaillée et inédite du fonctionnement de celui-ci dans le chapitre 3.

Ces observations ont induit de nouveaux développements au sein du code REM pour répondre aux problématiques soulevées. Une nouvelle méthode de calcul du débit des alimentations a été implémentée. Celle-ci construit la matrice jacobienne du système corrélant la variation des différentes contraintes fixées sur le sel avec la variation des débits d'alimentation, et ce à chaque cycle de contrôle, permettant ainsi d'avoir à chaque instant de l'évolution une image de la contribution de chaque alimentation sur le contrôle de chaque contrainte. Le nouveau modèle corrélé a permis d'améliorer la stabilité des systèmes simulés en permettant notamment le lissage des débits d'alimentation, et ce avec un écart de quelques pourcents sur ces dernières au bout de 200 ans d'évolution du MSFR de référence. Cela a fait l'objet d'un article de revue. La nouvelle stabilité et la possibilité de simuler un plus grand nombre d'alimentations qu'auparavant ont ouvert la voie à l'ajout de nouvelles contraintes physicochimiques telles que le contrôle de la fraction d'alcalins ou d'alcalinoterreux, le contrôle du volume ionique ou encore de l'électroneutralité du sel. Tout cela a conduit à la définition d'une méthodologie de modélisation des réacteurs à sels fondus venant conclure le chapitre 4.

Ces améliorations du schéma de calculs en évolution des RSF incinérateurs ont été appliquées sur l'analyse de plusieurs versions des concepts RAPTOR et ARAMIS-A. Elles ont été caractérisées et étudiées, fortes de ce nouveau code et des nouvelles possibilités qu'il offre. Dans un premier temps, différents RAPTORs identifiés au sein du projet MIMOSA ont servi de base pour des études de sensibilité de l'impact de la puissance spécifique sur les performances d'incinération d'un incinérateur. À géométrie équivalente, une augmentation de 66,67 % de la puissance thermique d'un RAPTOR incinérateur de plutonium va diminuer de 42 % le temps nécessaire à atteindre 80 % de rendement d'incinération du plutonium, c'est-à-dire de consommation par fission du plutonium mobilisé. Cette augmentation va même faire baisser la production d'américium de 17,3 %_{mass} au prix de 24,7 %_{mass} d'augmentation du curium. En revanche, en conservant cette augmentation de la puissance spécifique tout en maintenant constante la puissance thermique, les productions d'américium et de curium baissent de respectivement 36,8 %_{mass} et 27 %_{mass}. Ce choix de puissances se retrouve dans les différentes esquisses d'ARAMIS-A, alimentées en majorité avec de l'américium et utilisant un schéma de traitement différent des RAPTORs. Différents matériaux de structure ont été testés pour la composition des réflecteurs de

ce réacteur afin d'obtenir plusieurs types de spectre neutronique, de l'épithermique au plus rapide. Il s'en est suivi que, dans le cas d'un incinérateur d'américium, un spectre le plus épithermique possible, se traduisant par le plus de captures neutroniques possible sur l'américium, favorisait les performances d'incinération de ce dernier malgré une plus forte production de curium, allant jusqu'à un facteur 2,3 en fin d'évolution entre un « réflecteur » en B_4C et un réflecteur en MgO . Cela a justifié le choix de ce dernier matériau pour les réflecteurs des esquisses finalisées d'ARAMIS-A et ce malgré l'augmentation du volume de sel hors cœur pouvant dégrader cette même performance d'incinération, perdant 10,1 % de performance en ayant augmenté de 49,6 % le volume de sel total. Enfin, un concept alternatif nommé ARAMIS-B a été modélisé. Cette esquisse ajoute une couverture fertile autour du cœur d'ARAMIS-A. Elle a pour objectif de convertir du plutonium provenant de combustible MOX usé en plutonium ayant une qualité équivalente à celle d'un combustible UNE usé, tout en conservant les performances d'incinération de l'américium du concept initial. Un parc de 10 unités ARAMIS-B permet ainsi de convertir annuellement le plutonium ex-MOX provenant de 5 REP moxés à 30 % en plutonium. Cette masse pourrait permettre d'alimenter en combustible MOX neuf 4 REP similaires, comme montré dans le chapitre 5.

Enfin, un des RSF développés dans le cadre de ces projets a été modélisé dans des scénarios de déploiement de parcs afin de traduire la performance d'incinération d'un réacteur à la capacité d'une flotte à stabiliser l'inventaire en américium. Deux scénarios de modélisation du parc français ont été produits : un scénario ayant servi de *benchmark* entre les différents codes utilisés par les partenaires du projet ISAC et une adaptation du scénario *TerraWater* emprunté à la société civile et misant sur une hausse de la capacité électronucléaire installée d'ici à la fin du siècle. Le déploiement d'un parc composé d'incinérateurs ARAMIS-A a montré dans ces deux scénarios la capacité dudit parc pour stabiliser les réserves en américium en déployant respectivement 12 et 15 RSF. Néanmoins, l'hypothèse structurante menant à ce résultat est l'accessibilité dans les usines du cycle à une séparation poussée, performante et industrielle de l'américium du flux d'actinides allant actuellement à la vitrification. La baisse obtenue est ainsi de 72 %_{mass} au milieu du XXI^e siècle prouvant que ce concept atteint l'objectif fixé. L'esquisse ARAMIS-B établie sur ARAMIS-A est également déployée conjointement à celui-ci. La diminution de l'inventaire en américium est plus faible avec 64 %_{mass} en 2150 mais la gestion MOX en REP peut être prolongée ce qui réduit de 4 %_{mass} la masse d'uranium naturelle consommée à la fin du siècle, représentant 26 milles tonnes. Cela conclut le chapitre 6.

Perspectives

Plusieurs interrogations restent en suspens au regard du travail de thèse présenté au cours de ce manuscrit.

Même s'il apparaît évident que les recherches sur la gestion de l'américium via son incinération sont loin d'être achevées et d'avoir montré leur plein potentiel, il est d'ores et déjà possible de s'interroger sur la gestion des matières devenant *de facto* celles dominant la radiotoxicité des déchets : les autres actinides mineurs, soit le neptunium et le curium. Cela pourrait s'accompagner d'une évaluation plus globale de la radiotoxicité des déchets pour affiner les conclusions réalisées sur le seul critère de la stabilisation des inventaires. D'autres stratégies d'incinération des actinides mineurs pourraient être envisagées à l'échelle du parc. Une symbiose entre les REP et les RNR-Na d'un côté et les RSF de l'autre pourrait être étudiée avec un retour des matières passées en RSF dans les réacteurs de puissance. Une première étude a été réalisée en ajoutant une couverture améliorant la qualité fissile du plutonium à un incinérateur et il pourrait être intéressant de considérer un RSF dont cela serait l'objectif principal pour des études de parc symbiotiques, minimisant l'utilisation de combustible UNE et donc mitigeant le risque sur la ressource en uranium naturel. Enfin, une meilleure granularité pourrait être un atout pour une modélisation plus dynamique de ce type de réacteurs dans des études de scénarios.

Cette simulation dynamique des RSF incinérateurs pourrait s'appuyer sur le potentiel apporté par la modélisation jacobienne des alimentations implémentée dans le code REM. La compréhension fine de l'impact de chaque alimentation sur chaque contrainte pourrait nourrir d'éventuels métamodèles de RSF pour l'intégration dans les codes de scénarios. Une approche encore plus fine de la gestion des alimentations pourrait être étudiée avec la possibilité d'un schéma d'alimentation par espèces avec un ajustement fin par éléments, ou encore proposant le choix entre différents vecteurs isotopiques pour les actinides alimentés. Après un travail conséquent sur les stratégies d'alimentation, un retour sur les stratégies d'extraction pourrait être bénéfique, notamment en étudiant la conséquence de l'extraction par bullage de certaines espèces telles que le $ZrCl_4$ au lieu de l'élément seul. Enfin, les développements réalisés dans le code ont ouvert des possibilités sur l'ajout de contraintes physicochimiques et donc de nouvelles évolutions pourraient être envisagées.

De nombreuses interrogations sur la chimie des sels fondus restent encore ouvertes. L'oxydation du combustible dans les gros réacteurs à sels chlorures et les recherches sur des matériaux de structure résistant à la corrosion en font partie. La question de l'évolution des valences des différents éléments en fonction du temps de fonctionnement et le respect de l'électroneutralité globale et locale avec la conséquence que pourrait avoir une décroissance β^- sur celle-ci également. L'identification d'une éventuelle phase liquide de produits de fission métalliques incite à s'interroger sur la possibilité de nouvelles phases dans les sels combustibles complexes. Ces travaux de thèse ont ajouté leur graine quant à la plus grande prise en compte de la chimie dans les codes de neutronique et ouvrent un champ des possibles pour la suite. Enfin, toutes ces questions pourraient trouver des réponses dans la construction d'un prototype permettant de valider la plupart des hypothèses imposées aux codes de simulation voire d'en lever certaines.



<https://x.com/nuttmeister/status/1947254022282371282>

Bibliographie

- [1] E. MERLE-LUCOTTE. *Le cycle Thorium en réacteurs à sels fondus peut-il être une solution au problème énergétique du XXI^e siècle?* Habilitation à diriger des recherches, Institut Polytechnique de Grenoble, 2008.
- [2] P. VILLA. Évolution sur longue période de l'intensité énergétique. *CEPII, document de travail n° 98 – 08*, 1998. URL : https://www.cepii.fr/PDF_PUB/wp/1998/wp1998-08.pdf.
- [3] H. RITCHIE ET P. ROSADO. Energy mix. *Our World in Data*, 2020. URL : <https://ourworldindata.org/energy-mix>.
- [4] H. RITCHIE, P. ROSADO ET M. ROSER. CO₂ emissions by fuel. *Our World in Data*, 2020. URL : <https://ourworldindata.org/emissions-by-fuel>.
- [5] H. HERSBACH, B. BELL, P. BERRISFORD, G. BIAVATI, A. HORÁNYI, J. MUÑOZ SABATER, J. NICOLAS, C. PEUBEY, R. RADU, I. ROZUM, D. SCHEPERS, A. SIMMONS, C. SOCI, D. DEE, J.-N. THÉPAUT. ERA5 hourly data on single levels from 1940 to present. *Copernicus Climate Change Service (C3S) Climate Data Store (CDS)*, 2023. DOI : [10.24381/cds.adbb2d47](https://doi.org/10.24381/cds.adbb2d47).
- [6] Climate Pulse [En ligne, consulté en avril 2025]. URL : <https://pulse.climate.copernicus.eu>.
- [7] R. REPRÉSENTATION EN FRANCE. Taxonomie verte : mode d'emploi! - Commission européenne [En ligne, consulté en mai 2025]. URL : https://france.representation.ec.europa.eu/informations/taxonomie-verte-mode-demploi-2022-01-13_fr.
- [8] H. RITCHIE ET P. ROSADO. Nuclear energy. *Our World in Data*, 2020. URL : <https://ourworldindata.org/nuclear-energy>.
- [9] S. SCHLÖMER, T. BRUCKNER, L. FULTON, E. HERTWICH, A. MCKINNON, D. PERCZYK, J. ROY, R. SCHAEFFER, R. SIMS, P. SMITH, R. WISER,. Annex III : Technology-specific Cost and Performance Parameters. In *Climate Change 2014: Mitigation of Climate Change. Contribution of Working Group III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 2014. URL : https://www.ipcc.ch/site/assets/uploads/2018/02/ipcc_wg3_ar5_annex-iii.pdf.
- [10] Bilans GES [En ligne, consulté en juin 2025]. URL : <https://bilans-ges.ademe.fr>.
- [11] S. HUET. Nucléaire : 4 g de CO₂ par kWh [En ligne, consulté en avril 2025]. URL : <https://www.lemonde.fr/blog/huet/2022/06/22/nucleaire-4-g-de-co2-par-kwh/>.
- [12] J. COLOMER ET A. ESKENAZI-FRANC. 100 ans de nucléaire : repères chronologiques de l'histoire du nucléaire 1896 - 1995. *Direction de la Communication du CEA - Fontenay-aux-Roses*, 1998. URL : https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/52/111/52111233.pdf.
- [13] Association nucléaire pour la transition écologique | Voix du Nucléaire [En ligne, consulté en juin 2025]. URL : <https://www.voix-du-nucleaire.org>.
- [14] R. MUNROE. xkcd [En ligne, consulté en avril 2025]. URL : <https://xkcd.com/1162>.
- [15] The Database on Nuclear Power Reactors [En ligne, consulté en septembre 2023]. <https://pris.iaea.org/pris/>.
- [16] H. RITCHIE ET P. ROSADO. Which countries have the critical minerals needed for the energy transition? *Our World in Data*, 2024. URL : <https://ourworldindata.org/countries-critical-minerals-needed-energy-transition>.

- [17] RÉSEAU DE TRANSPORT D'ÉLECTRICITÉ (RTE). La production d'électricité française a atteint son plus haut niveau depuis 5 ans [En ligne, consulté en avril 2025]. URL : <https://www.rte-france.com/actualites/production-electricite-francaise-atteint-plus-haut-niveau-depuis-5-ans>.
- [18] SERVICE DES DONNÉES ET ÉTUDES STATISTIQUES (SDES) - MINISTÈRE DE LA TRANSITION ÉCOLOGIQUE ET DE LA COHÉSION DES TERRITOIRES. Chiffres clés de l'énergie - édition 2024. URL : <https://www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/edition-numerique/chiffres-cles-energie/>.
- [19] App | Electricity Maps [En ligne, consulté en avril 2025]. URL : <https://app.electricitymaps.com/>.
- [20] J. MAGILL, R. DREHER, Zs. SÓTI. Karlsruhe Nuklidkarte, 11. Edition, 2022.
- [21] H. B. YANG, Z. G. GAN, Z. Y. ZHANG, M. H. HUANG, L. MA, C. L. YANG, M. M. ZHANG, Y. L. TIAN, Y. S. WANG *et al.* α decay of the new isotope ^{227}Pu . *Phys. Rev. C* **110**, page 044302, 2024. DOI : [10.1103/PhysRevC.110.044302](https://doi.org/10.1103/PhysRevC.110.044302).
- [22] NAPPY1KENOBI. Table des isotopes par type de désintégration majoritaire, convertie depuis les données du programme Nucleus. 2008. URL : https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Table_isotopes.svg.
- [23] E. KHAN. Structure et stabilité des noyaux – Applications de l'énergie nucléaire. URL : https://theorie.ijclab.in2p3.fr/wp-content/uploads/sites/32/2022/01/ijclab-cnrs-khan-cours-fascicule_noyaux.pdf.
- [24] A. LAUREAU. *Développement de modèles neutroniques pour le couplage thermohydraulique du MSFR et le calcul de paramètres cinétiques effectifs*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2015.
- [25] M.-A. COGNET. *Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu : Exploration du champ des Paramètres et des Contraintes définissant le "Thorium Molten Salt Reactor"*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2005.
- [26] BUREAU INTERNATIONAL DES POIDS ET MESURES. Le Système international d'unités (SI). *Sèvres, BPIM, 9^e édition*, 2019. URL : <https://www.bipm.org/documents/20126/41483022/SI-Brochure-9.pdf>.
- [27] L. MESTHIVIERS. *Capacité de conversion des transuraniens en Réacteurs à Sels Fondus (RSF)*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2022.
- [28] N. SOPPERA, M. BOSSANT, O. CABELLOS, E. DUPONT2, C. J. DíEZ. JANIS: NEA JAVa-based Nuclear Data Information System. *EPJ Web Conf.* **146**, page 07006, 2017. DOI : [10.1051/epjconf/201714607006](https://doi.org/10.1051/epjconf/201714607006).
- [29] Discussion privée avec L. Giot, juin 2024.
- [30] F. PERDU. *Contributions aux études de sûreté pour des filières innovantes de réacteurs nucléaires*. Thèse de doctorat, Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2003.
- [31] Fonctionnement d'un réacteur nucléaire | IRSN [En ligne, consulté en avril 2025]. URL : <https://www.irsn.fr/savoir-comprendre/surete/fonctionnement-dun-reacteur-nucleaire>.
- [32] Energy Encyclopedia [En ligne, consulté en avril 2025]. URL : <https://www.energyencyclopedia.com>.
- [33] P. ANZIEU, B. BONIN, P. PRADEL. *Les réacteurs nucléaires à caloporteur gaz*. E-den, Une monographie de la Direction de l'énergie nucléaire. CEA Saclay ; Groupe Moniteur, 2006. URL : <https://cea.hal.science/cea-01151588>.
- [34] J. GUIDEZ, B. BONIN. *Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium*. E-den, Une monographie de la Direction de l'énergie nucléaire. CEA Saclay ; Groupe Moniteur, 2014. URL : <https://cea.hal.science/cea-01152795>.
- [35] A. ARMAND. Rapport fait au nom de la commission d'enquête visant à établir les raisons de la perte de souveraineté et d'indépendance énergétique de la France. *Assemblée nationale*, Rapport N°1028, 2023. URL : https://www.assemblee-nationale.fr/dyn/16/dossiers/etablir_raisons_perte_souverainete_energetique.
- [36] E. MERLE-LUCOTTE, D. HEUER, C. LE BRUN, J.M. LOISEAUX. Scenarios for a Worldwide Deployment of Nuclear Power. *International Journal of Nuclear Governance, Economy and Ecology* **1**, Issue 2, 2006.
- [37] Nucléaire : top départ pour les deux futurs EPR de Penly | Les Echos [En ligne, consulté en mai 2025]. URL : <https://www.lesechos.fr/industrie-services/energie-environnement/nucleaire-top-depart-pour-les-deux-futurs-epr-de-penly-1957282>.

-
- [38] Prononcé le 10 février 2022 - Emmanuel Macron 10/02/2022 - Politique de l'énergie | vie-publique.fr [En ligne, consulté en mai 2025]. URL : <https://www.vie-publique.fr/discours/283773-emmanuel-macron-10022022-politique-de-lenergie>.
- [39] Agnès Pannier-Runacher : « Il faut du nucléaire au-delà des six premiers EPR » [En ligne, consulté en mai 2025]. URL : <https://www.latribune.fr/climat/energie-environnement/il-faut-du-nucleaire-au-dela-des-six-premiers-epr-agnes-pannier-runacher-ministre-de-la-transition-energetique-987260.html>.
- [40] J. COUTURIER. *Éléments de sûreté nucléaire – Les réacteurs à eau sous pression*, chapitre 5 : Le développement de l'énergie nucléaire utilisant la fission de l'uranium 235 – Quelques notions de physique des réacteurs à eau sous pression, page 127–157. EDP Sciences, 2020.
- [41] Port de Marseille-Fos : Macron envisage l'installation de réacteurs nucléaires EPR - Var-Matin [En ligne, consulté en mai 2025]. URL : <https://www.varmatin.com/energie/port-de-marseille-fos-macron-envisage-linstallation-de-reacteurs-nucleaires-epr-857740>.
- [42] IRSN. Cycle du combustible nucléaire en France – Dossier « Impact cycle 2016 ». *Rapport IRSN n°2018-00007*, 2018. URL : https://www.irsn.fr/sites/default/files/documents/expertise/rapports_gp/IRSN_Rapport_GPU_Cycle-2016_25052018v21012020.pdf.
- [43] L. TILLARD. *Impact du déploiement de réacteurs de type ASTRID sur la gestion dynamique du plutonium dans des scénarios de transitions électronucléaires*. Thèse de doctorat, Université Paris Saclay, 2019.
- [44] MINISTÈRE DE L'ÉCONOMIE, DES FINANCES ET LA SOUVERAINETÉ INDUSTRIELLE ET NUMÉRIQUE. Nucléaire de demain : de nouveaux projets lauréats France 2030. *Dossier de presse*, 2024. URL : <https://www.info.gouv.fr/upload/media/default/0001/09/1f514699f28ae1285b17e91661635c833412c95b.pdf>.
- [45] Le Niger nationalise la filiale de la multinationale française de l'uranium Orano, un nouvel acte marquant la rupture du régime avec Paris [En ligne, consulté en août 2025]. URL : https://www.le-monde.fr/afrique/article/2025/06/20/le-niger-nationalise-la-filiale-du-geant-francais-de-l-uranium-orano-un-nouvel-acte-marquant-la-rupture-du-regime-avec-paris_6614686_3212.html.
- [46] La Chine accélère encore sur le nucléaire : 10 nouveaux réacteurs approuvés - Sfen [En ligne, consulté en août 2025]. URL : <https://www.sfen.org/rgn/chine-10-nouveaux-reacteurs/>.
- [47] Programmations pluriannuelles de l'énergie (PPE) | Ministères Aménagement du territoire Transition écologique [En ligne, consulté en mai 2025]. URL : <https://www.ecologie.gouv.fr/politiques-publiques/programmations-pluriannuelles-lenergie-ppe>.
- [48] MINISTÈRE DE L'ÉCONOMIE, DES FINANCES ET LA SOUVERAINETÉ INDUSTRIELLE ET NUMÉRIQUE. France 2030 : Présentation des lauréats sur la thématique nucléaire « Matières et déchets radioactifs ». *Dossier de presse*, 2022.
- [49] A. EUSTACHE *et al.* Simulation des performances d'un système nucléaire multi-recyclage PWR pour la valorisation des matériaux. In *Actes de la conférence internationale GLOBAL2024*, 2024.
- [50] Contrat stratégique de la filière nucléaire 2025 - 2028. URL : <https://www.entreprises.gouv.fr/files/files/Entites/CNI/2025/contrat-filiere-nucleaire-2025-2028-cni.pdf>, 2025.
- [51] NUWARD [En ligne, consulté en juin 2025]. URL : <https://www.nuward.com/fr>.
- [52] Réunion du 4ème Conseil de politique nucléaire. | Élysée [En ligne, consulté en août 2025]. URL : <https://www.elysee.fr/emmanuel-macron/2025/03/17/reunion-du-4eme-conseil-de-politique-nucleaire>.
- [53] Loi n° 2006-739 du 28 juin 2006 de programme relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs (1). <https://www.legifrance.gouv.fr/jorf/id/JORFTEXT000000240700>.
- [54] Article L. 542-1-1, code de l'environnement, Chapitre II, Dispositions particulières à la gestion durable des matières et déchets radioactifs. https://www.legifrance.gouv.fr/codes/article_lc/LEGIARTI000032043680.
- [55] Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs [En ligne, consulté en avril 2025]. <https://dechets-radioactifs.ecologie.gouv.fr>.
-

- [56] Plan national de gestion des matières et des déchets radioactifs 2022-2026. https://www.andra.fr/sites/default/files/2023-01/PNGMDR_2022.pdf.
- [57] Classification des déchets radioactifs et filières de gestion | Andra Inventaire [En ligne, consulté en avril 2025]. URL : <https://inventaire.andra.fr/les-matieres-et-dechets-radioactifs/classification-des-dechets-radioactifs-et-filieres-de-gestion>.
- [58] P. SERVELL. *Le multi-recyclage du plutonium dans les réacteurs à eau pressurisée : Développement de méthodes d'optimisation des gestions combustibles*. Thèse de doctorat, Aix-Marseille Université, 2022.
- [59] ANDRA. Projet Cigéo – Centre industriel de stockage réversible profond de déchets radioactifs en Meuse/Haute-Marne. URL : https://www.andra.fr/sites/default/files/2024-01/Andra_Plaquette_Cigeo_MAJ_JANV%202024_V3.pdf.
- [60] Colis de déchets vitrifiés CSD-V (Orano/La Hague) | Andra Inventaire [En ligne, consulté en septembre 2025]. URL : <https://inventaire.andra.fr/families/colis-de-dechets-vitrifies-csd-v-oranola-hague>.
- [61] X. DOLIGEZ. *Modélisation des systèmes nucléaires électrogènes pour l'étude des futurs possibles de l'énergie nucléaire*. Habilitation à diriger des recherches, Université Paris-Saclay, 2021.
- [62] F. COURTIN. *Étude de l'incinération du plutonium en REP MOX sur support d'uranium enrichi avec le code de simulation dynamique du cycle CLASS*. Thèse de doctorat, Université Bretagne Loire, 2017.
- [63] COMMISSION GÉNÉRALE DE TERMINOLOGIE ET DE NÉOLOGIE. Vocabulaire de l'ingénierie nucléaire (liste de termes, expressions et définitions adoptés). *Journal officiel de la République française n° 0043 du 20 février 2011, texte n° 40, NOR : CTNX1104030K*, 2011. URL : <https://www.legifrance.gouv.fr/jorf/id/JORFTEXT000023603662>.
- [64] T. LE MEUTE. *Modélisation d'un scénario d'insertion de réactivité dans un réacteur à sel fondu de génération IV*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2022.
- [65] B. TRÉMILLON. *La chimie en solvants non-aqueux*. Presses Universitaires de France, 1971.
- [66] Industrial Heaters for Molten Salts - Wattco [En ligne, consulté en septembre 2025]. URL : <https://www.wattco.com/fr/2023/01/pourquoi-utiliser-des-rechauffeurs-industriels-pour-les-sels-fondus/>.
- [67] H. PITOIS. *Conception et optimisation d'un réacteur de type MSFR en sels chlorures et en cycle uranium*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2023.
- [68] T. DUMAIRE, J.A. OCÁDIZ-FLORES, R.J.M.KONINGS, A.L. SMITH. A promising fuel for fast neutron spectrum Molten Salt Reactor: NaCl–ThCl₄–PuCl₃. *Calphad* **79**, page 102496, 2022. DOI : [10.1016/j.calphad.2022.102496](https://doi.org/10.1016/j.calphad.2022.102496).
- [69] O. BENEŠ, R.J.M. KONINGS. Thermodynamic evaluation of the NaCl–MgCl₂–UCl₃–PuCl₃ system. *Journal of Nuclear Materials* **375** (2), page 202–208, 2008. DOI : [10.1016/j.jnucmat.2008.01.007](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2008.01.007).
- [70] G. J. JANZ, RPT TOMKINS, CB ALLEN, JR DOWNEY JR, GL GARNER, U. KREBS, S. Kc SINGER. Molten salts: volume 4, part 2, chlorides and mixtures—electrical conductance, density, viscosity, and surface tension data. *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **4** (4), pages 871–1178, 1975.
- [71] Density of molten elements and representative salts. URL : <http://moltsalt.org/references/static/downloads/pdf/element-salt-densities.pdf>.
- [72] LES ELEMENTS CHIMIQUES - Propriétés - Rayon ionique [En ligne, consulté en janvier 2025]. URL : <https://www.elementschimiques.fr/?fr/proprietes/chimiques/rayon-ionique>.
- [73] A. H. MESKINE. *Précipitation des actinides et des lanthanides en cas d'entrée d'air incidentelle dans un réacteur à sels fondus contenant MgCl₂*. Lot 4, Livrable **L4.8**. Projet ISAC, 2025.
- [74] M. ALLIBERT. Thermodynamique chimique.
- [75] Réunions de travail LPSC-IJCLab (M. Allibert, C. Cannes et S. Delpech), 2024, 2025.
- [76] B. TRÉMILLON. Diagrammes d'équilibre potentiel-acidité (E -pO²⁻) dans les sels et hydroxydes alcalins fondus. *Pure and Applied Chemistry* **25** (2), page 395–428, 1971. DOI : [10.1351/pac197125020395](https://doi.org/10.1351/pac197125020395).

-
- [77] S. DELPECH, C. CARRIÈRE, A. CHMAKOFF, L. MARTINELLI, D. RODRIGUES, C. CANNES. Corrosion Mitigation in Molten Salt Environments. *Materials* **17** (3), 2024. DOI : [10.3390/ma17030581](https://doi.org/10.3390/ma17030581).
- [78] Site internet de SAMOSAfer [En ligne, consulté en janvier 2025]. URL : <https://samosafer.eu>.
- [79] P. VITROGE. *Chimie des actinides*. Techniques de l'ingénieur, 1999. DOI : [10.51257/a-v1-bn3520](https://doi.org/10.51257/a-v1-bn3520).
- [80] L. CLOT. *Mise à jour du schéma de traitement SAMOSAfer*. Note technique, Équipe MSFR, LPSC de Grenoble, France, **LCT 2**, 2024.
- [81] X. DOLIGEZ *et al.* Coupled study of the Molten Salt Fast Reactor core physics and its associated reprocessing unit. *Annals of Nuclear Energy* **64**, page 430–440, 2014.
- [82] X. DOLIGEZ. *Influence du retraitement physico-chimique du sel combustible sur le comportement du MSFR et sur le dimensionnement de son unité de retraitement*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2010.
- [83] M. W. ROSENTHAL. An Account of Oak Ridge National Laboratory's Thirteen Nuclear Reactors. *ORNL/TM-2009/181*, 2009. URL : <https://info.ornl.gov/sites/publications/files/Pub20808.pdf>.
- [84] Evaluation of the Molten Salt Breeder Reactor. *Rapp. tech. ORNL*, 1972. DOI : [10.2172/4372873](https://doi.org/10.2172/4372873).
- [85] Oak Ridge National Laboratory : Solving the Big Problems | ORNL [En ligne, consulté en juillet 2025]. URL : <https://www.ornl.gov>.
- [86] M. HERY, A. LECOCQ. Réacteurs à sels fondus : Synthèse des études réalisées entre 1973 et 1983. *Synthèse générale*, 1983.
- [87] D. LECARPENTIER. *Contribution aux travaux sur la transmutation des déchets nucléaires, voie des réacteurs à sel fondu : le concept AMSTER, aspects physiques et sûreté*. Thèse de doctorat, Conservatoire National des Arts et Métiers, 2010.
- [88] Welcome to the Generation IV International Forum | GIF Portal [En ligne, consulté en juillet 2025]. URL : <https://www.gen-4.org>.
- [89] M. BROVCHENKO. *Études préliminaires de sûreté du réacteur à sels fondus MSFR*. Thèse de doctorat, Université de Grenoble, 2013.
- [90] A. NUTTIN. *Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique*. Thèse de doctorat, Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2002.
- [91] L. MATHIEU. *Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu : Exploration du champ des Paramètres et des Contraintes définissant le "Thorium Molten Salt Reactor"*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2005.
- [92] T. SORNAY. *Démarche et outils de calcul pour l'étude multiphysique et multicritère des réacteurs à sels fondus de type SMR*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2024.
- [93] D. GÉRARDIN. *Développement de méthodes et d'outils numériques pour l'étude de la sûreté du réacteur à sels fondus MSFR*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2018.
- [94] L. GIOT. *Modélisation : de la physique fondamentale vers les applications*. Habilitation à diriger des recherches, Nantes Université, 2023.
- [95] Site internet de SAMOFAR [En ligne, consulté en janvier 2025]. URL : <http://samofar.eu>.
- [96] Site internet d'ENDURANCE [En ligne, consulté en janvier 2025]. URL : <https://www.endurance-msr-project.eu>.
- [97] I. MORLAES, S. LORENZI, S. DEANESI, A. L. SMITH, D. C. VISSER, E. LOSA, J. A. OCÁDIZ FLORES, E. CAPELLI, S. DELPECH, O. BENEŠ, P. SOUČEK, E. GUILLAUT, L. VAN DEN DURPEL, S. DULLA, L. CLOT, E. MERLE, A. LAUREAU, L. GIOT, N. GIRAULT, J. M. HAMY, J. KREPEL, P. RUBIOLO ET C. MAROZZI. Exploring the safety and performance of molten salt reactors for their deployment in the European Union: the MIMOSA and ENDURANCE projects. *EPJ Nuclear Sci. Technol.* **11**, page 30, 2025. DOI : [10.1051/epjn/2025026](https://doi.org/10.1051/epjn/2025026).
-

- [98] M.-S. CHENAUD, V. PASCAL, C. CHABERT-KORALEWSKI, J. SERP, P. LAGHOUTARIS, J.-C. GARNIER, F. SUDREAU, B. MOREL, I. MORLAES, O. DROUVOT, S. DAVID, E. MERLE, J.-M. HAMY, F. BOTTE, S. TAKENOUTI, A. SANNA. The French R&D Collaborative Project ISAC on Fast MSR Dedicated to Actinides Transmutation. In *Actes de la conférence internationale SFM 2024*, Vienne, Autriche, 2024.
- [99] Site internet de MIMOSA [En ligne, consulté en janvier 2025]. URL : <https://www.mimosa-euratom.eu>.
- [100] Site internet de NAAREA [En ligne, consulté en janvier 2025]. URL : <https://www.naarea.fr>.
- [101] Site internet de Stellaria [En ligne, consulté en janvier 2025]. URL : <https://www.stellaria.fr>.
- [102] Site internet de Thorizon [En ligne, consulté en janvier 2025]. URL : <https://thorizon.com>.
- [103] 2024 GIF Annual Report. URL : https://www.gen-4.org/sites/default/files/2025-06/GIF_2024_Annual_Report.pdf.
- [104] E. MERLE, F. ALCARO, M. ALLIBERT, M.-S. CHENAUD, L. CLOT, L. GIOT, Y. GORSSE, B. HOMBOURGER, E. KLINKBY, T. KOOYMAN, A. LAUREAU ET S. LORENZI. *review of the eu msr designs*. Deliverable **D1.1**. Projet ENDURANCE, 2025.
- [105] L. CLOT. *Modélisation du recyclage des matières dans les réacteurs à sels fondus*. Rapport de stage de 3^e année d'école d'ingénieur/Maître 2, Grenoble INP - Phelma, UGA, 2022. Information disponible auprès de Léa Tillard, lea.tillard@orano.group.
- [106] L. MESTHIVIERS, E. MERLE, A. LAUREAU, L. CLOT, M. ALLIBERT, E. CAPELLI, S. DELPECH, L. GIOT, D. HEUER, B. MOREL, I. MORLAES, H. PITOIS, G. SENENTZ ET L. TILLARD. *technical note regarding "first assumptions on molten salt compositions of different msr configurations"*. Milestone **MS3**. Projet MIMOSA, 2023.
- [107] M.-P. DELAVENU, E. CAPELLI. *evaluation of the fuel salt reprocessing strategy in synergy with la Hague*. Deliverable **D5.1**. Projet MIMOSA, 2025.
- [108] B. FESSLER. *identification and quantification of valuable isotopes in molten salt reactors*. Deliverable **D6.1**. Projet MIMOSA, 2024.
- [109] V. PASCAL, P. ALLEGRE, C. CHABERT, P. GAUTHÉ, E. MARTÍN LÓPEZ, J. MARTINET, L. MATTEO, M. MASCARON, L. TARDIEU, C. VENARD, J. SERP, B. MOREL, I. MORLAES, G. SENENTZ, F. SOUVIGNET. Molten salt reactor technology: Opportunities of molten salt fuel for actinides management. In *Actes de la réunion technique AIEA – Considerations for the Back End of the Fuel Cycle of Small Modular Reactors*, 2022.
- [110] J. MARTINET, S. HARMANCIJ, C. VENARD. *Première configuration du cœur de référence d'ARAMIS-A vis-à-vis des performances de transmutation attendues*. Lot 2, Livrable **L2.1**. Projet ISAC, 2023.
- [111] R. MARLIER. *ARAMIS-A première architecture de référence (esquisse V1.5)*. Lot 2, Livrable **L2.2**. Projet ISAC, 2024.
- [112] P. BOISSEAU, L. CLOT, R. MARLIER, E. MARTÍN LÓPEZ, V. PASCAL, F. SOUVIGNET. *Esquisse finale et potentiel de transmutation*. Lot 2, Livrable **L2.3**. Projet ISAC, 2025.
- [113] C. VENARD, M. FORGE, J. MARTINET, L. MESTHIVIERS, L. CLOT, A. LAUREAU, E. MERLE, L. TILLARD, P.-E. DUFOUR, D. LECARPENTIER. *Évaluation des solutions de transmutation alternatives*. Lot 2, Livrable **L2.4**. Projet ISAC, 2024.
- [114] C. LAGUERRE. *Hypothèses du scénario de benchmark*. Lot 3, Livrable **L3.1**. Projet ISAC, 2022.
- [115] B. CARLIER. *Rapport des études de benchmark entre codes de scénarios pour l'intégration des RSF dans le parc électronucléaire français*. Lot 3, Livrable **L3.4**. Projet ISAC, 2024.
- [116] PROJET ISAC. *Scénarios exploratoires et études de sensibilité : synthèse des résultats*. Lot 3, Livrable **L3.8**. Projet ISAC, 2025.
- [117] C. LAGUERRE, B. CARLIER, P. SERVELL, P.-É. DUFOUR, D. LECARPENTIER, L. CLOT, A. ROTH, L. TILLARD, E. MERLE. Benchmarking Molten Salt Reactors Modelling for Americium Transmutation in Fuel Cycle Simulation Studies. *Progress in Nuclear Science and Technology* **8**, pages 143–148, 2025. DOI : [10.15669/pnst.8.143](https://doi.org/10.15669/pnst.8.143).

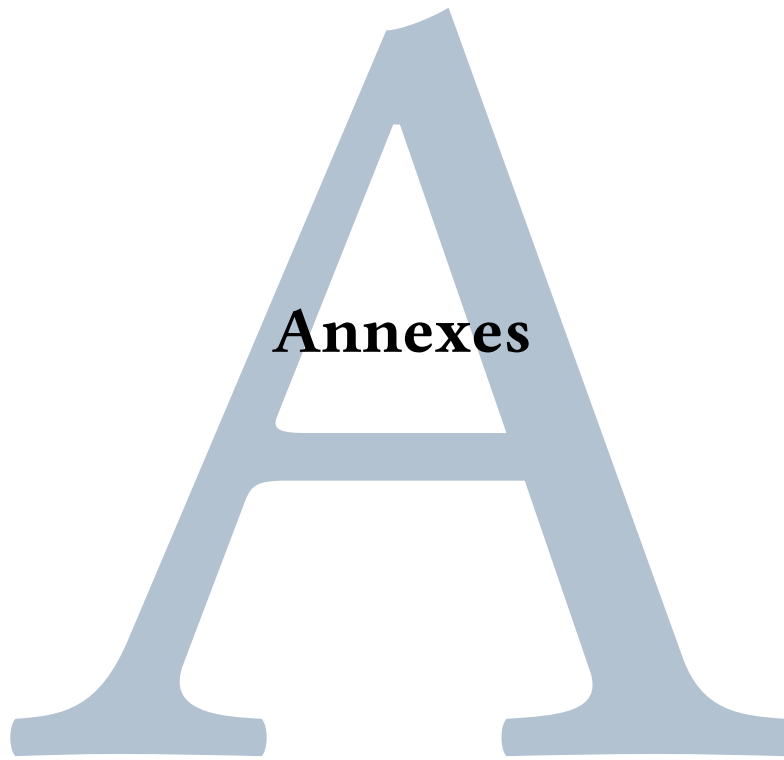
-
- [118] A. ROTH. *Étude de la capacité d'incinération d'une flotte de réacteurs à sels fondus*. Rapport de stage de 2^e année d'école d'ingénieur, Grenoble INP - Phelma, UGA, 2024.
- [119] J.F. VIDAL *et al.* New modelling of LWR assemblies using the APOLLO2 code package. pages 15–19, 2007.
- [120] D. SCHNEIDER *et al.* APOLLO3® CEA/DEN deterministic multi-purpose code for reactor physics analysis. 2016.
- [121] M. COSTE-DELCLAUX, C. DIOP, A. NICOLAS, B. BONIN. *Neutronique*. E-den, Une monographie de la Direction de l'énergie nucléaire. CEA Saclay ; Groupe Moniteur, 2013. URL : <https://cea.hal.science/cea-01152822>.
- [122] R. SANCHEZ *et al.* APOLLO2 year 2010. pages 474–499, 2010.
- [123] G. MARLEAU, R. ROY ET A. HÉBERT. DRAGON : A Collision Probability Transport Code for Cell and Supercell Calculations. *Institut de génie nucléaire, École Polytechnique de Montréal*, pages Report IGE–157, 1994.
- [124] J. LEPPÄNEN *et al.* The Serpent Monte Carlo code: Status, development and applications in 2013. *Annals of Nuclear Energy* **82**, pages 142–150, 2015.
- [125] P.K. ROMANO *et al.* The OpenMC Monte Carlo particle transport code. *Annals of Nuclear Energy* **51**, pages 274–281, 2013. DOI : [10.1016/j.anucene.2012.06.040](https://doi.org/10.1016/j.anucene.2012.06.040).
- [126] E. BRUN *et al.* Tripoli-4®, CEA, EDF and AREVA reference Monte Carlo code. *Annals of Nuclear Energy* **82**, pages 151–160, 2015.
- [127] D. MANCUSI *et al.* Overview of TRIPOLI-5, a Monte Carlo code for HPC. *EPJ Nuclear Sci. Technol.* **10**, 26, 2024.
- [128] J. A. KULEZA. MCNP® Code Version 6.3.1 Theory & User Manual. *Los Alamos Lab report*, LA-UR-24-24602, Rev. 1, 2024. URL : <https://www.osti.gov/biblio/2372634>.
- [129] J. F. BRIESMEISTER. MCNP4B—A General Monte Carlo N particule transport code. *Los Alamos Lab report*, LA-12625-M0, 1997.
- [130] M. SHAYESTEH, M. SHAHRIARI. Calculation of time-dependent neutronic parameters using Monte Carlo method. *Annals of Nuclear Energy* **36**, 2009.
- [131] T. J. URBATSCH, R. A. FORSTER, III, R. E. PRAEL, R. J. BECKMAN. Estimation and Interpretation of k_{eff} Confidence Intervals in MCNP. *Los Alamos Lab report*, LA-12658, 1995.
- [132] N. CAPELLAN. *Couplage 3D neutronique thermohydraulique. Développement d'outils pour les études de sûreté des réacteurs innovants*. Thèse de doctorat, Université Paris XI - Orsay, 2009.
- [133] A.J.M. PLOMPEN, O. CABELLOS, C. DE SAINTJEAN *et al.* The joint evaluated fission and fusion nuclear data library, JEFF-3.3. *Eur. Phys. J. A* **51**, page 181, 2020. DOI : [10.1140/epja/s10050-020-00141-9](https://doi.org/10.1140/epja/s10050-020-00141-9).
- [134] O. MÉPLAN *et al.* MURE v.3 : SMURE, Serpent-MCNP Utility for Reactor Evolution. *User Guide - 2nd Edition*, LPSC 17002, 2021. URL : <https://lpsc.in2p3.fr/MURE/html/SMURE/UserGuide/UserGuide.html>.
- [135] J. L. CONLIN *et al.* NJOY21: Next generation nuclear data processing capabilities. *EPJ Web of Conferences* **146**, page 09040, 2017.
- [136] M. B. CHADWICK *et al.* ENDF/B-VII. 1 nuclear data for science and technology: cross sections, covariances, fission product yields and decay data. *Nuclear data sheets* **112.12**, pages 2887–2996, 2011.
- [137] F. B. BROWN. The *makxsf* Code with Doppler Broadening. *Los Alamos National Laboratory*, pages Rapport LA–UR–06–00, 2006.
- [138] H. ROSTAING. *Optimisation for the thorium fuel cycle of a D₂O-cooled PWR-like SMR core with reactivity managed by Spectral Shift Control (addition of H₂O in coolant or insertion of ZrH₂ rods)*. Rapport de stage de 3^e année d'école d'ingénieur, Grenoble INP - Phelma, UGA, 2024. URL : <https://hal.science/hal-04842190>, URN : [urn:nbn:se:kth:diva-360848](https://nbn-resolving.org/urn:nbn:se:kth:diva-360848).
-

- [139] W. HAECK, B. COCHET, F. BERNARD ET A. TYMEN. Experimental validation of VESTA 2.1. *Actes de la conférence internationale SNA+MC*, page 03603, 2013.
- [140] E. MERLE-LUCOTTE, D. HEUER, M. ALLIBERT, X. DOLIGEZ, V.GHETTA. Simulation Tools and New Developments of the Molten Salt Fast Reactor. *Actes de la conférence internationale European Nuclear Conference ENC2010*, 2010.
- [141] D. HEUER. Management of different data types encountered in the analysis of nuclear physics experiments in the DALI development package. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **324**, Issue 3, pages 569–573, 1993. DOI : [10.1016/0168-9002\(93\)91062-R](https://doi.org/10.1016/0168-9002(93)91062-R).
- [142] T. COURAU. Introduction à l’environnement DALI dans le cadre de calculs MCNP évoluant. Note interne LPSC Grenoble, 2003.
- [143] L. CLOT, E. MERLE, A. LAUREAU, D. HEUER, L. TILLARD, G. SENENTZ. New model developments for fuel supply strategies in molten salt reactors: Application to the REM depletion code. *EPJ Nuclear Sci. Technol.* **11**, page 65, 2025. DOI : [10.1051/epjn/2025063](https://doi.org/10.1051/epjn/2025063).
- [144] L. CLOT, E. MERLE, A. LAUREAU, D. HEUER, L. TILLARD, G. SENENTZ. New simulation controls for the molten salt reactors related neutronic evolution code REM. *EPJ Web Conf.* **302**, page 05003, 2024. DOI : [10.1051/epjconf/202430205003](https://doi.org/10.1051/epjconf/202430205003).
- [145] B. FAURE, T. KOOYMAN, A. DI SALVO, P. SCIORA. MSR life-cycle assessment: description of the MOSARELA platform and application to the EVOL/MARS benchmark on MSFR. In *Actes de la conférence internationale ICAPP 2021*, paper 21590, 2021.
- [146] P.-É. DUFOUR, D. LECARPENTIER, L. CLOT, S. DELTOUR, A. LAUREAU, J. MARTINET, E. MERLE, G. SENENTZ, L. TILLARD ET C. VENARD. A tool to estimate isotopic evolution for actinides transmutation dedicated fast molten salt reactors. In *Actes de la conférence internationale SFM 2024*, Vienne, Autriche, 2024.
- [147] A. BODINIER. Modélisation d’un concept Réacteur à Sels Fondus avec le code SERPENT dans le cadre du projet national ISAC. Rapport de stage de master 1, Nantes Université, 2023.
- [148] J. HALWANI, L. CLOT, M. ALLIBERT, A. BODINIER, L. GIOT, A. LAUREAU, E. MERLE, L. TILLARD, F. BERTRAND, E. MARTIN LOPEZ, V. PASCAL, D. GERARDIN, E. COURTIN, H.W. SIAKA. Application of the lines of defence method and decay heat calculations to Chloride Molten Salt Reactor ARAMIS-A. In *Actes de la conférence internationale ICAPP 2025*, Antibes, France, 2025.
- [149] A. LAUREAU, A. GRUEL, V. LAMIRAND, T. LIGONNET, A. SARDET ET A. PAUTZ. Analysis of the preliminary campaign for the PETALE program. *EPJ Nuclear Sci. Technol.* **9**, page 25, 2023. DOI : [10.1051/epjn/2023010](https://doi.org/10.1051/epjn/2023010).
- [150] Y. MOLLA. *Calculs de la puissance résiduelle et des incertitudes associées à l’aide d’une approche de Monte Carlo : Premières études sur l’impact des données nucléaires de décroissance*. Thèse de doctorat, Nantes Université, 2025.
- [151] CENTRE NATIONAL DE RESSOURCES TEXTUELLES ET LEXICALES. SCÉNARIO : Etymologie de SCÉNARIO [En ligne, consulté en avril 2025]. URL : <https://www.cnrtl.fr/etymologie/scenario>.
- [152] D. HEUER, E. MERLE-LUCOTTE. Programmes de simulation du déploiement de l’électro-nucléaire dans l’environnement DALI : module Scénarios Du Futur. Note interne LPSC Grenoble, Octobre 2004.
- [153] L. CLOT. *Étude des contraintes inhérentes au déploiement massif de réacteurs à sels fondus*. Rapport de stage de 2^e année d’école d’ingénieur, Grenoble INP - Phelma, UGA, 2021. URL : https://lpsc.in2p3.fr/wp-content/uploads/2025/01/2021_RapportStage2A-LouiliamClot-equipeMSFR_comp.pdf.
- [154] G. KRIVTCHIK. COSI7 : The new CEA reference electro-nuclear simulation tool. In *Actes de la conférence internationale PHYSOR2020 International Conference on Physics of Reactors : Transition to a Scalable Nuclear Future*, *EPJ Web Conf*, Volume **247**, (Paper No. 13001), 2020.
- [155] S. MASSARA *et al.* TIRELIRE-STRATEGIE: a fuel cycle simulation code for EDF nuclear strategy studies. In *Actes de la conférence internationale GLOBAL 2005*, Tokyo, Japan, 2005.

- [156] B. CARLIER. Presentation of COSAC & some studies conducted with COSAC. In *Technical Workshop on Dynamic Nuclear Fuel Cycle*, 2016.
- [157] P.-É. DUFOUR *ET AL.* Definition and characterization of refueling equilibrium for batch-operated molten salt reactors. *submitted to Nuclear Engineering and Design*, 2025.
- [158] L. MATHIEU. Documentation Pratique pour MCNP. *Version 4c2*, 2007.
- [159] P. REUSS. *Précis de neutronique*. EDP Sciences, 2003.
- [160] R. M. HARBOUR, K. W. MACMURDO, F. J. MCCROSSON. Thermal-Neutron Capture Cross Sections and Capture Resonance Integrals of Americium-241. *Nuclear Science and Engineering* **50** (4), page 364–369, 1973. DOI : [10.13182/NSE73-A26571](https://doi.org/10.13182/NSE73-A26571).
- [161] M. BROVCHENKO, J.-L. KLOOSTERMAN, L. LUZZI, E. MERLE, D. HEUER, A. LAUREAU, O. FEYNBERG, V. IGNATIEV, M. AUFIERO, A. CAMMI, C. FIORINA, F. ALCARO, S. DULLA, P. RAVETTO, L. FRIMA, D. LATHOUWERS, B. MERK. Neutronic benchmark of the molten salt fast reactor in the frame of the EVOL and MARS collaborative projects. *EPJ Nuclear Sci. Technol.* **5** (2), 2019. DOI : [10.1051/epjn/2018052](https://doi.org/10.1051/epjn/2018052).
- [162] L. CLOT. *Études des configurations de référence du WP3 MIMOSA*. Note technique, Équipe MSFR, LPSC de Grenoble, France, **LCT** **1**, 2024.
- [163] J. MARTINET. *Données d'interface ARAMIS-A : inventaire en évolution, flux neutronique, activités, puissances résiduelles et taux de combustion*. Lettre à l'attention des contributeurs du projet ISAC, 2023.
- [164] J. MARTINET, L. MESTHIVIERS. *Données d'évolution ISAC – ARAMIS-A V1.0*. Lettre à l'attention des contributeurs du projet ISAC, 2024.
- [165] J. MARTINET, L. MESTHIVIERS. *Projet ISAC - Description données d'évolution du réacteur ARAMIS-A V1.0*. Note technique interne au projet ISAC, 2024.
- [166] J. MARTINET, L. MESTHIVIERS. *Données d'évolution ISAC – ARAMIS-A V1.5*. Lettre à l'attention des contributeurs du projet ISAC, 2024.
- [167] J. MARTINET, L. MESTHIVIERS. *Projet ISAC - Description données d'évolution du réacteur ARAMIS-A V1.5*. Note technique interne au projet ISAC, 2024.
- [168] N. LE BOURDONNEC, S. LE COUPANNEC. *Prédiction des espèces chimiques formées en situation accidentelle dans un réacteur à sels fondus*. Rapport de stage de fin d'étude, École des applications militaires de l'énergie atomique, 2025.
- [169] OECD Nuclear Energy Agency. *Handbook on Lead-Bismuth Eutectic Alloy and Lead Properties, Materials Compatibility, Thermal-hydraulics and Technologies*. OECD Publishing, 2015.
- [170] N. KOZYREV, V. GORDEEV. Density and Thermal Expansion of Liquid Lead: A Critical Review. *Metals* **12** (1), page 16, 2022. DOI : [10.3390/met12010016](https://doi.org/10.3390/met12010016).
- [171] DIRECTION DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE DU CEA. Rapport sur la gestion durable des matières nucléaires. *Tome 1 : La gestion durable des matières radioactives avec les réacteurs de 4^e génération*, 2012.
- [172] DIRECTION DE L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE DU CEA. Rapport sur la gestion durable des matières nucléaires. *Tome 2 : La séparation et la transmutation des éléments radioactifs à vie longue*, 2012.
- [173] B. LARÉDO *et al.* Scénario énergétique pour la neutralité carbone de la France en 2050 et au-delà - *Version 1.0*. URL : <https://www.voix-du-nucleaire.org/campagnes/terrawater-le-scenario-energetique-des-voix/>.
- [174] Institut Terrawater [en ligne, consulté en septembre 2025]. URL : <https://institut-terrawater.org>.
- [175] T. JAUSSOIN. Metawatt [En ligne, consulté en mars 2025]. URL : <https://metawatt.fr>.
- [176] N. WAECKEL (EDF-SEPTEN). Les Gestions des cœurs et les perspectives. *Convention annuelle de la SFEN*, 2009.
- [177] L. TILLARD, L. MESTHIVIERS *et al.* Estimation of the vitrified canister production for PWR fleets integrating MSRs with different fuel cycle strategies. In *Actes de la conférence internationale GLOBAL2022*, 2022.

Bibliographie

- [178] T. W. LIPPMAN. NRC chief seeks to restore nuclear power's image and fortunes. *The Washington Post*, 1991.
- [179] Wilhemÿn Klætarih. *Soutenance de thèse Louiliam Clot (20/11/2025)*, publiée le 27 novembre 2025 [En ligne, consulté en janvier 2026]. URL : <https://www.youtube.com/watch?v=bpUvYQXVYPQ>.
- [180] L. GIOT, J. HALWANI, E. MERLE, A. LAUREAU, L. CLOT. *Identification des besoins d'amélioration des données nucléaires liées à l'estimation de la puissance résiduelle et propositions d'améliorations*. Lot 2, Livrable **L2.8**. Projet ISAC, 2026.

A large, light blue, serif capital letter 'A' is centered on the page. Inside the upper triangular part of the 'A', the word 'Annexes' is written in a bold, black, serif font.

Annexes

In France, there are 365 kinds of cheese and one kind of reactor. In the United States it's the opposite.

Ivan Selin [178]



Liste des réacteurs étudiés au cours de cette thèse et des matériaux les composants

Sommaire

A - 1 Réacteurs étudiés	XIV
A - 2 Composition des matériaux utilisés	XIV

Tableaux

A - 1 Réacteurs étudiés au cours de cette thèse	XIV
A - 2 Composition atomique du B_4C	XIV
A - 3 Composition atomique de l'acier 316H	XIV
A - 4 Composition atomique du NiCrW	XV
A - 5 Composition atomique du MgO	XV
A - 6 Composition atomique de l'Inconel 625	XVI
A - 7 Composition atomique de l'EM10	XVI

A - 1 Réacteurs étudiés

Le tableau A - 1 présente les principaux réacteurs étudiés dans ce travail.

Réacteur	Présentation	Simulation neutronique	Simulation pour déploiement
ARAMIS-A	Section 2.4.3	Section 5.2	Section 6.2.1.2
ARAMIS-B	Section 2.4.3	Section 5.3	Section 6.2.3.2
MSFR de référence	Section 2.4.1	Section 4.2.3	[153]
RAPTOR	Section 2.4.2	Section 5.1	[153]
REP	Section 1.3.1	Section 1.3.1	Section 6.1.3.2
RNR-Na	Interlude 2.1	-	Section 6.1.3.3

TABLEAU A - 1 – Réacteurs étudiés au cours de cette thèse

A - 2 Composition des matériaux utilisés

Le tableau A - 2 présente la composition atomique du B_4C utilisée dans les simulations des réacteurs de cette thèse avec une densité variable selon les simulations considérées.

Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire
^{10}B	0,15856	^{11}B	0,64144	^{nat}C	0,2

TABLEAU A - 2 – Composition atomique du B_4C

Le tableau A - 3 présente la composition atomique de l'acier 316H utilisée dans les simulations du RAPTOR et des différentes versions d'ARAMIS-A utilisant de l'acier.

Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire
^{nat}C	0,0046125	^{53}Cr	0,0169007	^{62}Ni	0,0039014
^{28}Si	0,0136954	^{54}Cr	0,0041291	^{64}Ni	0,0009624
^{29}Si	0,0006717	^{55}Mn	0,0010083	^{92}Mo	0,0021894
^{30}Si	0,0004286	^{54}Fe	0,0405038	^{94}Mo	0,0013494
^{31}P	0,0008048	^{56}Fe	0,6131411	^{95}Mo	0,0023114
^{32}S	0,0004937	^{57}Fe	0,0139113	^{96}Mo	0,0024072
^{33}S	0,0000038	^{58}Fe	0,0018194	^{97}Mo	0,0013719
^{34}S	0,0000208	^{58}Ni	0,0781113	^{98}Mo	0,0034500
^{50}Cr	0,0081924	^{60}Ni	0,0290864	^{100}Mo	0,0013612
^{52}Cr	0,1519167	^{61}Ni	0,0012436	Densité	8,0 g/cm ³

TABLEAU A - 3 – Composition atomique de l'acier 316H

Le tableau A - 4 présente la composition atomique du NiCrW utilisée dans les simulations du MSFR de référence.

Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire
¹⁰ B	0,000065	⁴⁸ Ti	0,0021754	⁶¹ Ni	0,0090544
¹¹ B	0,0002616	⁴⁹ Ti	0,0001596	⁶² Ni	0,0288695
^{nat} C	0,00294	⁵⁰ Ti	0,0001529	⁶⁴ Ni	0,0073522
²⁷ Al	0,0005235	⁵⁰ Cr	0,003482	⁹² Mo	0,0010924
²⁸ Si	0,0023192	⁵² Cr	0,0671461	⁹⁴ Mo	0,0006809
²⁹ Si	0,0001178	⁵³ Cr	0,0076138	⁹⁵ Mo	0,0011719
³⁰ Si	0,0000776	⁵⁴ Cr	0,0018952	⁹⁶ Mo	0,0012279
³¹ P	0,000228	⁵⁵ Mn	0,002571	⁹⁷ Mo	0,000703
³² S	0,0000418	⁵⁴ Fe	0,0003696	⁹⁸ Mo	0,0017763
³³ S	0,0000003	⁵⁶ Fe	0,0058018	¹⁰⁰ Mo	0,0007089
³⁴ S	0,0000019	⁵⁷ Fe	0,000134	¹⁸² W	0,0264686
³⁶ S	0,00000001	⁵⁸ Fe	0,0000178	¹⁸³ W	0,014293
⁴⁶ Ti	0,0002434	⁵⁸ Ni	0,5407473	¹⁸⁴ W	0,0306037
⁴⁷ Ti	0,0002195	⁶⁰ Ni	0,2082949	¹⁸⁶ W	0,0283963
Densité	10,0 g/cm ³				

TABLEAU A - 4 – Composition atomique du NiCrW

Le tableau A - 3 présente la composition atomique du MgO utilisée dans les simulations des différentes versions d'ARAMIS-A utilisant de ce matériaux en réflecteur ainsi que d'ARAMIS-B avec une densité variable selon les simulations considérées.

Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire
¹⁶ O	0,4988103	¹⁸ O	0,0010002	²⁵ Mg	0,0501000
¹⁷ O	0,0001895	²⁴ Mg	0,3947550	²⁶ Mg	0,0551450

TABLEAU A - 5 – Composition atomique du MgO

Le tableau A - 6 présente la composition atomique de l'Inconel 625 utilisée dans les simulations des différentes versions d'ARAMIS-A comportant une gaine autour du circuit combustible.

Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire
^{nat} C	0,004881	⁴⁹ Ti	0,000265	⁶⁰ Ni	0,1595677
²⁷ Al	0,0086913	⁵⁰ Ti	0,0002538	⁶¹ Ni	0,0069363
²⁸ Si	0,0096261	⁵⁰ Cr	0,009798	⁶² Ni	0,022116
²⁹ Si	0,0004888	⁵² Cr	0,1889454	⁶⁴ Ni	0,0056323
³⁰ Si	0,0003222	⁵³ Cr	0,0214249	⁹³ Ni	0,0198772
³¹ P	0,0002839	⁵⁴ Cr	0,0053331	⁹² Mo	0,0071606
³² S	0,0002607	⁵⁵ Mn	0,0053356	⁹⁴ Mo	0,0044907
³³ S	0,0000021	⁵⁴ Fe	0,003068	⁹⁵ Mo	0,0077589
³⁴ S	0,0000115	⁵⁶ Fe	0,0481615	⁹⁶ Mo	0,0081499
³⁶ S	0,00000004	⁵⁷ Fe	0,0011123	⁹⁷ Mo	0,0046838
⁴⁶ Ti	0,0004042	⁵⁸ Fe	0,000148	⁹⁸ Mo	0,0118742
⁴⁷ Ti	0,0004042	⁵⁹ Co	0,0099479	¹⁰⁰ Mo	0,004763
⁴⁸ Ti	0,0036116	⁵⁸ Ni	0,4142482	Densité	8,38296 g/cm ³

TABLEAU A - 6 – Composition atomique de l'Inconel 625

Le tableau A - 7 présente la composition atomique de l'acier EM10 utilisée dans les simulations des différentes versions d'ARAMIS-A comportant une cuve autour du circuit combustible.

Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire	Isotope	Proportion molaire
³ He	0,00000002	⁵⁰ Cr	0,0038928	⁶¹ Ni	0,0000532
⁴ He	0,010954	⁵² Cr	0,0750693	⁶² Ni	0,0001697
^{nat} C	0,0045629	⁵³ Cr	0,0085123	⁶⁴ Ni	0,0000432
²⁸ Si	0,0053993	⁵⁴ Cr	0,0021189	⁹² Mo	0,0008368
²⁹ Si	0,0002742	⁵⁵ Mn	0,004988	⁹⁴ Mo	0,0005248
³⁰ Si	0,0001807	⁵⁴ Fe	0,0510524	⁹⁵ Mo	0,0009067
⁴⁶ Ti	0,0000189	⁵⁶ Fe	0,8014141	⁹⁶ Mo	0,0009524
⁴⁷ Ti	0,000017	⁵⁷ Fe	0,0185082	⁹⁷ Mo	0,0005473
⁴⁸ Ti	0,0001688	⁵⁸ Fe	0,0024631	⁹⁸ Mo	0,0013876
⁴⁹ Ti	0,0000124	⁵⁸ Ni	0,0031784	¹⁰⁰ Mo	0,0005566
⁵⁰ Ti	0,0000119	⁶⁰ Ni	0,0012243	Densité	7,75414 g/cm ³

TABLEAU A - 7 – Composition atomique de l'EM10

– *I went forward in time to view alternate futures. To see all the possible outcomes of the coming conflict.*

– *How did you see?*

– *14,000,605.*

– *How many did we win?*

– 🤖👤

Dr. Stephen Strange & Iron Man, *Avengers: Infinity War*

B

Banque d'illustrations additionnelles

Sommaire

B - 1	Diagramme DOT du scénario <i>Benchmark</i>	XVII
B - 2	Illustrations issues de la soutenance de thèse	XX
B - 2.1	Illustration du cycle du combustible envisagé	XX
B - 2.2	Vecteur isotopique dans la couverture d'ARAMIS-B	XX
B - 2.3	Réserves en neptunium et en curium	XXI
B - 2.4	Illustration des réacteurs utilisés	XXII

Figures

B - 1	<i>Benchmark</i> – Diagramme DOT (partie 1)	XVIII
B - 2	<i>Benchmark</i> – Diagramme DOT (partie 2)	XIX
B - 3	Illustration simplifiée du cycle du combustible	XX
B - 4	Évolution de l'isotopie du plutonium dans la couverture d'ARAMIS-B	XX
B - 5	<i>Benchmark</i> – Réserves en neptunium, américium et curium	XXI
B - 6	<i>TerraWater</i> – Réserves en neptunium, américium et curium	XXI
B - 7	Illustration des réacteurs présentés	XXII

B - 1 Diagramme DOT du scénario *Benchmark*

Les figures B - 1 et B - 2 illustrent le diagramme DOT en sortie du code ISF pour le scénario *Benchmark*.

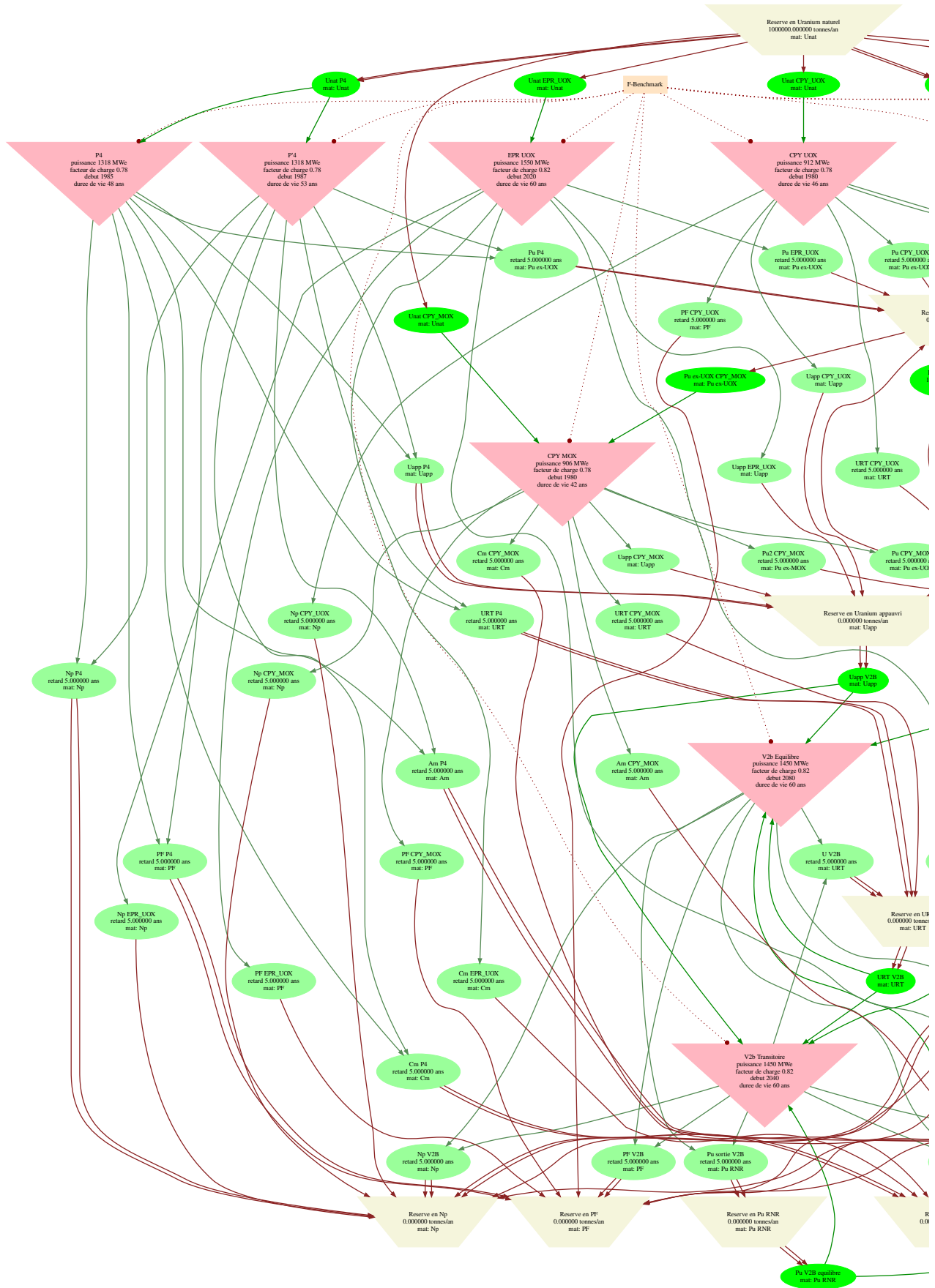


FIGURE B - 1 – Benchmark – Diagramme DOT (partie 1)

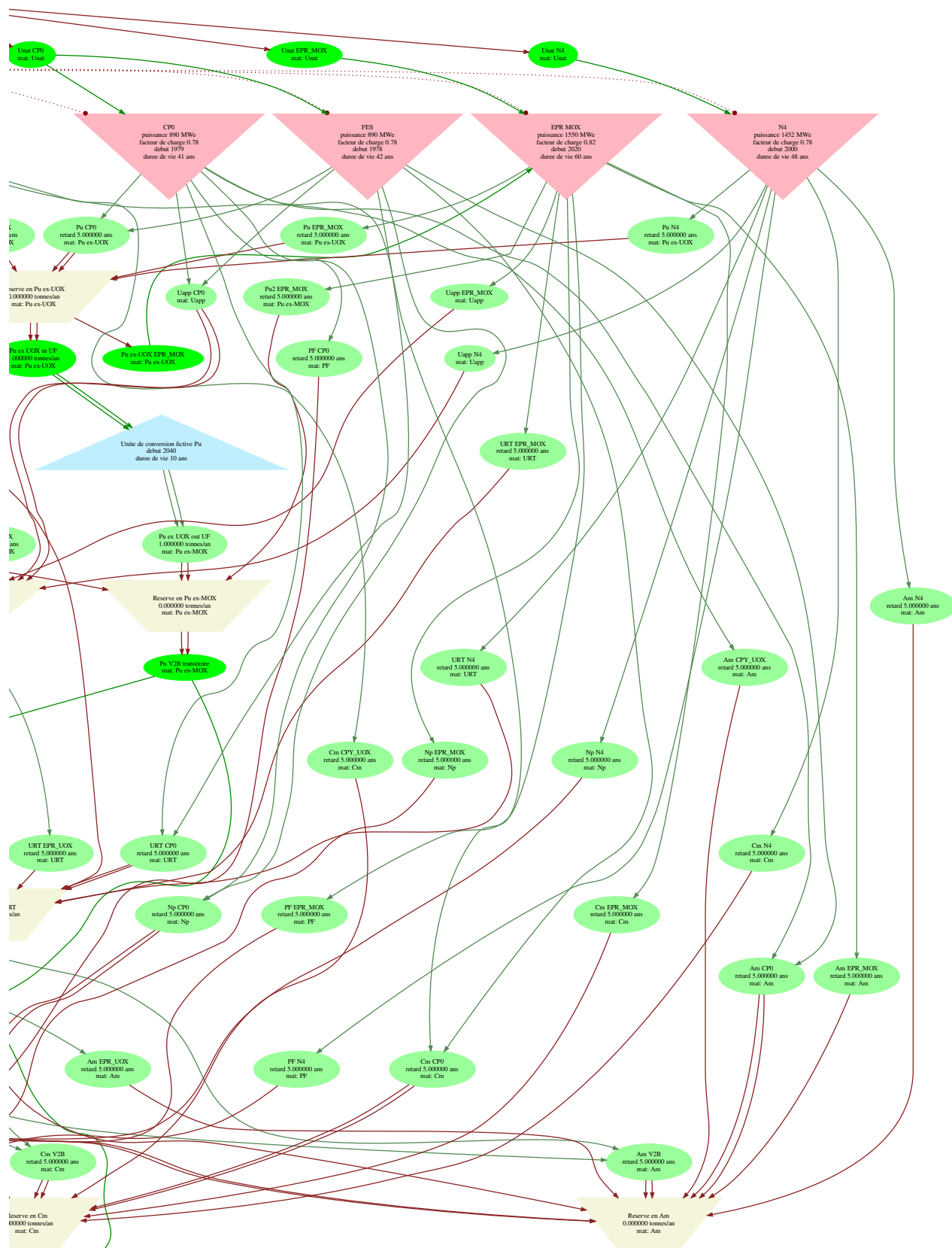


FIGURE B - 2 – Benchmark – Diagramme DOT (partie 2)

B - 2 Illustrations issues de la soutenance de thèse

Certaines illustrations ont été réalisées spécifiquement pour les besoins de la présentation de soutenance de cette thèse [179] et apportent des compléments intéressants à ce manuscrit.

B - 2.1 Illustration du cycle du combustible envisagé

La figure B - 3 propose une illustration simplifiée du cycle du combustible considéré au cours de cette thèse.

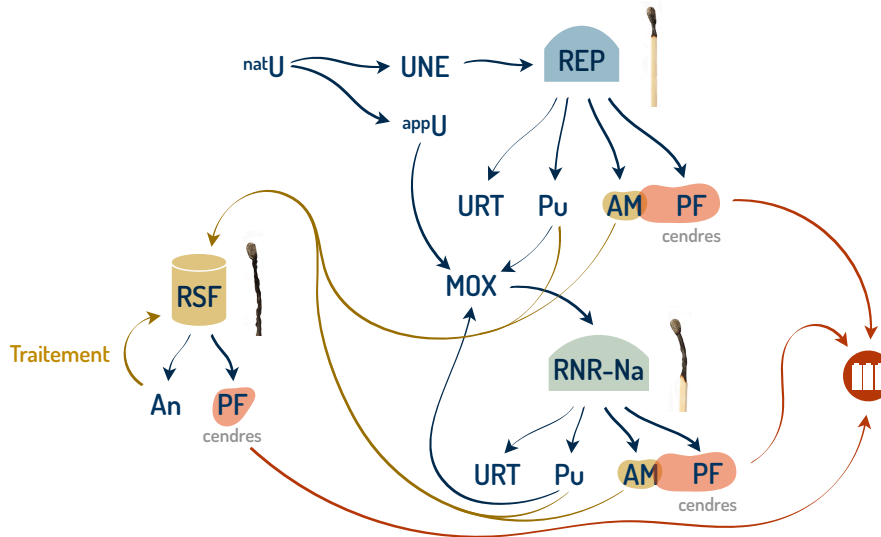


FIGURE B - 3 – Illustration simplifiée du cycle du combustible

B - 2.2 Vecteur isotopique dans la couverture d'ARAMIS-B

La figure B - 4 illustre l'évolution du vecteur isotopique du plutonium présent dans la couverture convertisseuse du réacteur ARAMIS-B. Sont représentés également le vecteur ex-MOX d'entrée (à gauche) et le vecteur ex-UNE cible (à droite).

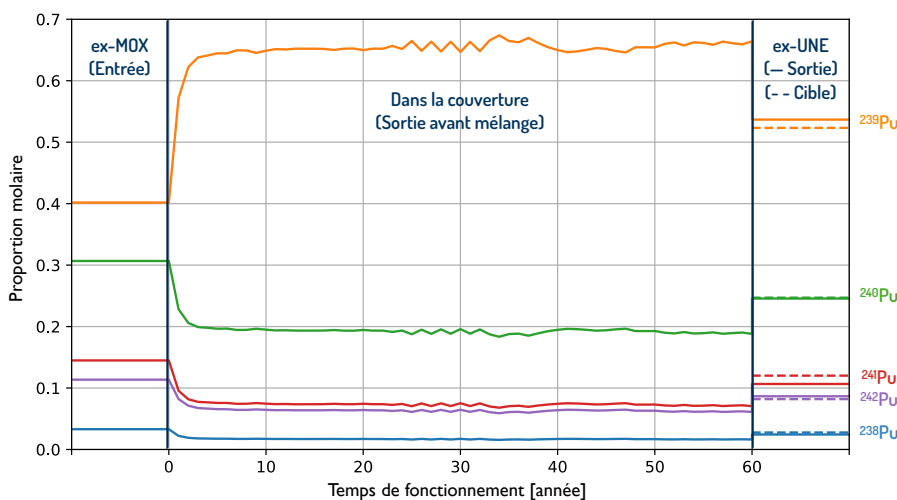


FIGURE B - 4 – Évolution de l'isotopie du plutonium dans la couverture d'ARAMIS-B

B - 2.3 Réserves en neptunium et en curium

La figure B - 5 montre les inventaires en neptunium, américium et curium dans les scénarios *Benchmark* sans RSF, avec ARAMIS-A et avec un parc hybride ARAMIS-A et ARAMIS-B tandis que la figure B - 6 présente ces inventaires pour les scénarios *TerraWater* avec et sans incinérateurs.

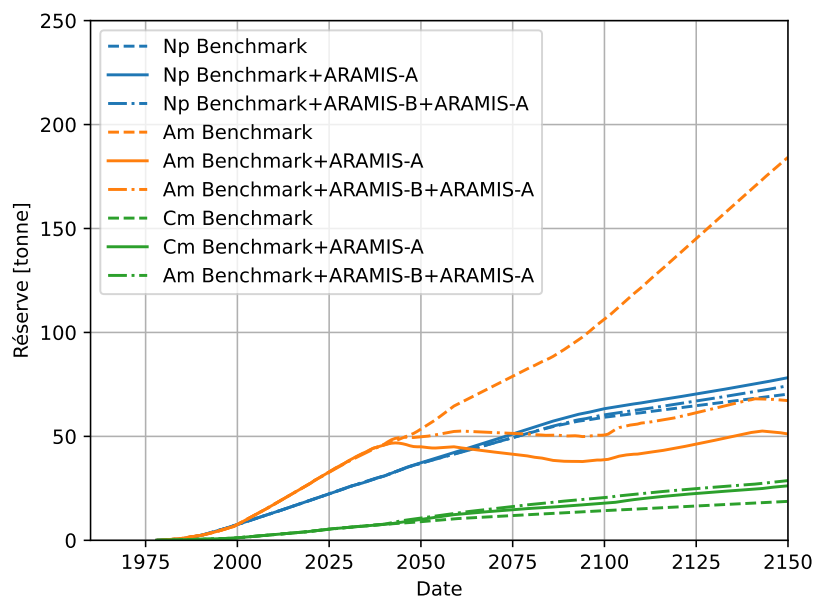


FIGURE B - 5 – Benchmark – Réserves en neptunium, américium et curium

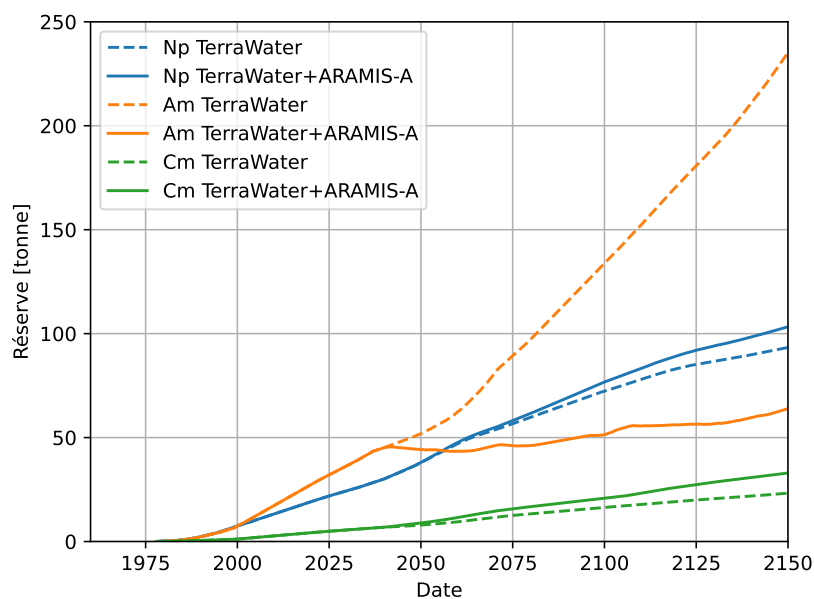
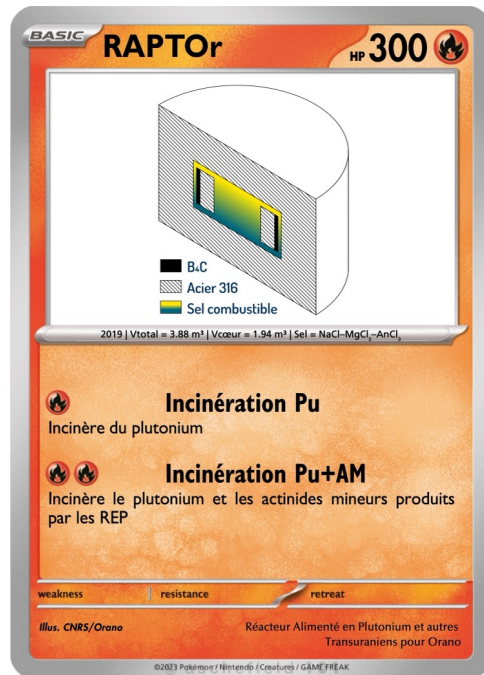


FIGURE B - 6 – TerraWater – Réserves en neptunium, américium et curium

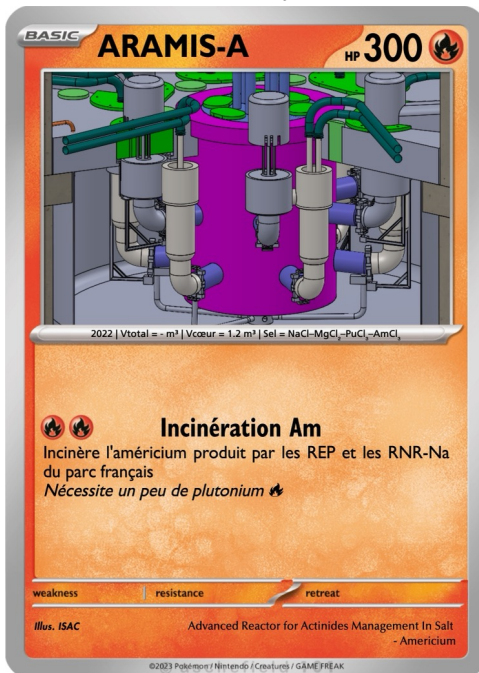
B - 2.4 Illustration des réacteurs utilisés



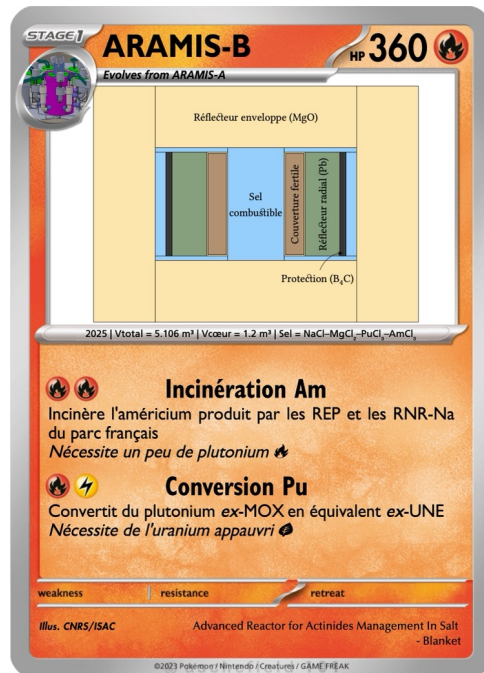
(a) MSFR de référence



(b) RAPTOR



(c) ARAMIS-A



(d) ARAMIS-B

FIGURE B - 7 – Illustration des réacteurs présentés



Complément d'information sur les codes ERE et REM

Sommaire

C - 1	Configuration de ERE	XXIV
C - 1.1	Configuration d'un REACTEUR	XXIV
C - 1.2	Configuration d'une FORME	XXVI
C - 2	Configuration de REM	XXVII
C - 2.1	Configuration de l'EVOLUTION	XXVII
C - 2.2	Configuration de l'INVENTAIRE	XXVII
C - 2.3	Configuration des COMPOSITE	XXVIII
C - 3	Descriptions simplifiées de la géométrie du RAPTOR dans les fichiers d'entrée du Constructeur et des codes ERE et MCNP	XXX
C - 3.1	Fichier d'entrée – Constructeur	XXX
C - 3.2	Fichier d'entrée – Code ERE	XXXI
C - 3.3	Fichier d'entrée – Code MCNP	XXXII

Tableaux

C - 1	Mot-clefs de configuration de la classe REACTEUR	XXIV
C - 2	Mot-clefs de configuration de la classe CELLULE	XXV
C - 3	Mot-clefs de configuration de la classe UNITE_RETRAITEMENT	XXV
C - 4	Mot-clefs de configuration de la classe ALIMENTATION	XXVI
C - 5	Mot-clefs de configuration des la classes CONTRAINTE et VARIABLE	XXVI
C - 6	Mot-clefs de configuration de la classe FORME	XXVI
C - 7	Mot-clefs de configuration de la classe EVOLUTION	XXVII
C - 8	Mot-clefs de configuration de la classe INVENTAIRE	XXVIII
C - 9	Mot-clefs de configuration de la classe COMPOSITE	XXIX
C - 10	Mot-clefs de configuration des différents MT dans la classe COMPOSITE	XXX

C - 1 Configuration de ERE

Le module ERE est composé de différentes classes et sous-classes dont les mots-clefs de configuration sont présentés dans les tableaux suivant. Un exemple de fichier de configuration simple est présent dans le chapitre 2 de la thèse de Xavier Doligez [82].

C - 1.1 Configuration d'un REACTEUR

La classe REACTEUR contient, entre autres, les sous-classes CELLULE, UNITE_RETRAITEMENT, ALIMENTATION et CONTROLE, cette dernière contenant CONTRAINTE et VARIABLE. Le tableau C - 1 montre les différents mot-clefs de configuration pour un REACTEUR.

Mot-clef	Défaut	Description
Nom		Nom de la classe, également nom de la simulation
NomFicConfig		Nom du fichier de configuration REM (voir section C - 2)
nombre_de_cycles	1000	Nombre total de cycles MCNP
nombre_de_cycles_inactifs	50	Nombre de cycles inactifs MCNP
nombre_de_particules_sources	1000	Nombre de particules sources MCNP
fixer_k	faux	Fixe le k_{eff} dans l'ancien système de contrôles
EVOLUER		Appelle la classe EVOLUER et lance la simulation

TABLEAU C - 1 – Mot-clefs de configuration de la classe REACTEUR

C - 1.1.1 Configuration d'une CELLULE

Une CELLULE est une cellule géométrique du réacteur dont les mot-clefs de configuration sont explicités dans le tableau C - 2. Celle-ci est composée d'une forme géométrique (voir section C - 1.2) ainsi que d'un matériau ayant un composite et une composition (voir section C - 2.3). Enfin, les cellules peuvent regrouper, les cellules d'un même GROUPE évoluant comme une seule et même cellule.

Mot-clef	Défaut	Description
Nom		Nom de la cellule
Nom_composite		Nom du composite contenu dans la cellule
Nom_composition		Nom du matériau contenu dans la cellule
NomFicComposition		Nom du fichier de composition du matériau
Groupe		Nom du groupe contenant la cellule
Temperature	900 [K]	Température d'évolution de la cellule
Densite		Densité initiale du matériau contenu dans la cellule
idf_FORME		La FORME géométrique de la cellule (voir section C - 1.2)
POSITION		Appel de la classe POSITION contenant la position spatiale X, Y et Z
idf_CELLULE_REFERENC		Si utilisé, nom de la cellule dans laquelle la cellule est imbriquée
NomFicValences		Nom du fichier contenant les valences personnalisées des éléments à utiliser
vaseDExpansion	faux	Si la cellule se comporte comme un vase d'expansion dynamique
construire_spectre_flux	faux	Demander à MCNP de construire le spectre neutronique dans la cellule
energie_min_flux	1e-3	Énergie minimum du spectre à construire
energie_max_flux	1e8	Énergie maximum du spectre à construire
nombre_de_bins_flux	1100	Nombre de <i>bins</i> dans le spectre à construire

TABLEAU C - 2 – Mot-clefs de configuration de la classe CELLULE

C - 1.1.2 Configuration d'une UNITE_RETRAITEMENT

Les unités de (re)traitement sont décrits dans des fichiers binaires compilés à l'aide du module SUR. Ces fichiers décrivent les usines en listant les éléments extraits, avec éventuellement une efficacité d'extraction, à l'aide d'une pompe et d'un temps de vidange. Les éléments extraits sont stockés dans des réservoirs, ayant chacun des temps d'injection, et des stockages. Il est également possible de réinjecter les éléments extraits après passage dans les réservoirs. Le tableau C - 3 indique les mot-clefs de configuration de la classe UNITE_RETRAITEMENT associé au fichier binaire de l'usine considérée.

Mot-clef	Défaut	Description
Nom_fichier		Nom du fichier décrivant l'usine
Nom_usine		Nom de l'usine
Nom_composite		Nom du composite impacté par l'usine

TABLEAU C - 3 – Mot-clefs de configuration de la classe UNITE_RETRAITEMENT

C - 1.1.3 Configuration d'une ALIMENTATION

Le tableau C - 4 présente les mot-clefs de configuration de la classe ALIMENTATION.

Mot-clef	Défaut	Description
Nom		Nom de l'alimentation
NomFicCompoAlim		Nom du fichier décrivant la composition de l'alimentation
NomCellule		Nom de la cellule alimentée
NomGroupe		Nom du groupe de cellules concerné
Debit_initial	0 [at/s]	Valeur initiale du débit d'alimentation $S_k(0)$

TABLEAU C - 4 – Mot-clefs de configuration de la classe ALIMENTATION

C - 1.1.4 Configuration d'un CONTROLE

Un contrôle corrélé à une alimentation est composée des deux sous-classes CONTRAINTE et VARIABLE, présentées dans le tableau C - 5.

Mot-clef	Défaut	Description
CONTRAINTTE.nom		Nom de la contrainte
CONTRAINTTE.nomCellule		Nom de la cellule dans laquelle s'applique la contrainte
CONTRAINTTE.type		Type de contrainte (voir tableau 4.4 page 115)
VARIABLE.nomAlimentation		Nom de l'alimentation associée
VARIABLE.pourcentVariation	0	p_k^v (voir section 4.2.2.2)
VARIABLE.variationAbsolue	0	ΔS_k^{\max} (voir section 4.2.2.2)
VARIABLE.debitMinimum	0	S_k^{\min} (voir section 4.2.2.2)
VARIABLE.debitMaximum	0	S_k^{\max} (voir section 4.2.2.2)
VARIABLE.pourcentVariationMax	0	$p_k^{v,\max}$ (voir section 4.2.2.2)
VARIABLE.pourcentCorrection	0	p_k^c (voir section 4.2.2.2)

TABLEAU C - 5 – Mot-clefs de configuration des la classes CONTRAINTE et VARIABLE

C - 1.2 Configuration d'une FORME

Les formes décrivent la géométrie des cellules simulées dans le code ERE. Le tableau C - 6 présente les différents mot-clefs de configuration de cette classe décrite dans la section 3.5.3.2 de ce manuscrit.

Mot-clef	Défaut	Description
Nom		Nom de la forme
Type	ERE_FORME_TypeIndefini	Type de la forme (voir section 3.5.3.2)
Dimension1	0 [m]	Première dimension (voir section 3.5.3.2)
Dimension2	0 [m]	Deuxième dimension (voir section 3.5.3.2)
Dimension3	0 [m]	Troisième dimension (voir section 3.5.3.2)
Demi_theta	0 [rad]	Angle ϑ pour le cylindre (voir section 3.5.3.2)
Orientation	CGM_CYLINDRE_orientation_Z	Orientation du cylindre
reflechissante	faux	Rend les parois de la forme réfléchissante (ajout de * dans MCNP)

TABLEAU C - 6 – Mot-clefs de configuration de la classe FORME

C - 2 Configuration de REM

Contrairement à ERE, où les différentes configurations peuvent être dispersées dans différents fichiers, la configuration des différentes classes de REM s'effectue dans un seul fichier appelé par ERE. Les classes de REM dont la configuration présente un intérêt dans les travaux de cette thèse sont EVOLUTION, INVENTAIRE et COMPOSITE.

C - 2.1 Configuration de l'EVOLUTION

Le tableau C - 7 présente les mot-clefs de configuration de la classe EVOLUTION dans REM.

Mot-clef	Défaut	Description
nom	i	Nom des fichiers de sortie
duree_totale_d_evolution	157783680 [s]	t_{fin} (voir section 3.3.2.3)
executer_MCNP	vrai	Si le code lance MCNP
nom_executable_mcnp	mcnp	Chemin vers l'exécutable MCNP
nombre_de_tasks	0	Le nombre de <i>threads</i> parallélisés pour le lancement de MCNP
nombreDeThreadsOMP	0	Le nombre de <i>threads</i> parallélisés pour l'intégration dans IME
chemin_scratch		Chemin vers un dossier temporaire pour lancer les calculs
faire_un_fichier_log	vrai	Fabriquer un fichier log tout au long de la simulation
construire_xmdir		Appeler le module makxsf
liстер_INVENTAIRE	faux	Lister tous les inventaires initiaux
precision_abs_MCNP	0,00001	Précision utilisée pour calculer l'erreur sur les calculs MCNP
nom_back_mcnp		Chemin vers un dossier contenant des calculs MCNP à réutiliser
mode_interpolation	1 (spline)	Mode d'interpolation des sections efficaces f_i
corriger_densite	vrai	Corriger la densité des matériaux
faire_un_graph_INVENTAIRE	faux	Faire un fichier DOT listant les différents inventaires initiaux
ki2_COMPOSITION_min	0,5	χ_{min}^2 (voir section 3.3.2.3)
ki2_COMPOSITION_max	2	χ_{max}^2 (voir section 3.3.2.3)
facteurReduction	$\sqrt{2}$	Le facteur de réduction des pas MCNP (voir section 3.3.2.3)
facteurAugmentation	$\sqrt{2}$	Le facteur d'augmentation des pas MCNP (voir section 3.3.2.3)

TABLEAU C - 7 – Mot-clefs de configuration de la classe EVOLUTION

C - 2.2 Configuration de l'INVENTAIRE

Le tableau C - 8 présente les mot-clefs de configuration de la classe INVENTAIRE dans REM.

Mot-clef	Défaut	Description
chemin_ACE_BANQUE_perso		Chemin vers la banque personnel de données nucléaires
fichier_priorites		Fichier listant les base de données à utiliser par ordre de priorité
executable_makxf		Chemin vers l'exécutable makxf
executableNJOY		Chemin vers l'exécutable NJOY
utiliser_JEF3T	faux	Utiliser la base de données JEFF-3.3
intervalle_total	2592000 [s]	Δt_1 (voir section 3.3.2.3)
fixer_la_puissance	vrai	Fixer la puissance thermique du réacteur
puissance_fixee_MW	3000 [MW]	Valeur de la puissance thermique du réacteur P_{th}
intervalle_initial	1e5	Longueur du pas IME initial
variation_puissance_max	0.001	Variation maximale acceptée de la puissance pour les pas IME
variation_k_max	0	c_k (voir section 3.3.2.3)
coef_pente_sec_eff	0	Coefficient de la variation initiale de sections efficaces
modeCorrectionDensite	0 (ref)	Mode de la correction de la densité (0 pour géométrique, 1 pour ionique)
pas_de_fuites	faux	Considère les fuites neutroniques nulles dans le calcul du k_{eff} par IME
fixer_k	faux	Fixe le k_{eff} dans l'ancien système de contrôles
verifier_disponibilite	vrai	Vérifie si les données nucléaires sont disponible et lance NJOY sinon
faire_l_evolution	vrai	Réalise l'évolution
nombreDAjustementsMin	10	Nombre minimum d'ajustements IME
tempsDAjustementMaximum	0	Longueur maximum du pas de temps d'ajustements IME

TABLEAU C - 8 – Mot-clefs de configuration de la classe INVENTAIRE

C - 2.3 Configuration des COMPOSITE

Le tableau C - 9 présente les mot-clefs de configuration de la classe COMPOSITE dans REM.

Mot-clef	Défaut	Description
basePourLesPF	ENDF_B6	Base de données utilisée pour les rendements de fission
energieDeFission	200 [MeV]	Énergie ϵ_i utilisée dans le calcul de la puissance thermique
profondeur_max	1000	Profondeur maximum de l'arbre des noyaux
ne_pas_elaguer_le_xenon	faux	Ne pas élaguer le xénon dans l'arbre des noyaux
delta_temperature	20 [K]	Écart maximum accepté entre la température demandée et celle des données disponibles
demi_vie_min_pour_elaguage	3600 [s]	Demi-vie minimum pour élaguer les noyaux dans l'arbre
demi_vie_min_pour_reactions	36000 [s]	Demi-vie minimum pour prendre en compte les réactions sur les noyaux
lambda_effectif_max	1e30	$\lambda_{\text{eff}}^{\text{max}}$ (voir section 3.3.2.5)
annulerPoidsAlim	faux	Ne pas prendre en compte les noyaux présents dans les alimentations pour le calcul du χ^2
type_de_specbre	REM_COMPOSITE_type_de_specbre_plat	Énergie à prendre en compte pour les rendements de fission (voir section 4.2.2.1)
nomFichierBranchementsCaptures		Nom du fichier contenant les rapports de branchement personnalisés à utiliser
precision_abs	1e-8	Précision sur le calcul des N_i
nubar_autorise	vrai	Utilisation du MT -7 dans MCNP
depot_d_energie_autorise	vrai	Utilisation du MT -8 dans MCNP
dpa_autorise	faux	Utilisation du MT 444 dans MCNP

TABLEAU C - 9 – Mot-clefs de configuration de la classe COMPOSITE

Enfin, le tableau C - 10 présente toutes les réactions utilisés dans REM et configurées dans la classe COMPOSITE tandis que la formule (C - 1) montre le calcul de la section efficace d'absorption dans IME.

Mot-clef	Réaction	MT	Mot-clef	Réaction	MT
nf_autorise	(z, f)	-6	n3np_autorise	(z, 3np)	42
n2nd_autorise	(z, 2nd)	11	nn2p_autorise	(z, n2p)	44
n2n_autorise	(z, 2n)	16	nnpalpha_autorise	(z, np α)	45
n3n_autorise	(z, 3n)	17	ng_autorise	(n, γ)	102
nnalpha_autorise	(z, n α)	22	np_autorise	(n, p)	103
nn3alpha_autorise	(n, n3 α)	23	nd_autorise	(z, d)	104
n2nalpha_autorise	(z, 2n α)	24	nt_autorise	(z, t)	105
n3nalpha_autorise	(z, 3n α)	25	nhe3_autorise	(z, ^3He)	106
nnp_autorise	(z, np)	28	nalpha_autorise	(z, α)	107
nn2alpha_autorise	(z, n2 α)	29	n2alpha_autorise	(z, 2 α)	108
n2n2alpha_autorise	(z, 2n2 α)	30	n3alpha_autorise	(z, 3 α)	109
nnd_autorise	(z, nd)	32	n2p_autorise	(z, 2p)	111
nnt_autorise	(z, nt)	33	npalpha_autorise	(z, p α)	112
nnhe3_autorise	(z, n ^3He)	34	nt2alpha_autorise	(z, t2 α)	113
nnd2alpha_autorise	(z, nd2 α)	35	nd2alpha_autorise	(z, d2 α)	114
nnt2alpha_autorise	(z, nt2 α)	36	npd_autorise	(z, pd)	115
n4n_autorise	(z, 4n)	37	npt_autorise	(z, pt)	116
n2np_autorise	(z, 2np)	41	ndalpha_autorise	(z, d α)	117

TABLEAU C - 10 – Mot-clefs de configuration des différents MT dans la classe COMPOSITE

$$\begin{aligned} \sigma_a = & \sigma_f + \sigma_\gamma + \sigma_p + \sigma_d + \sigma_t + \sigma_{2p} + \sigma_{^3\text{He}} + \sigma_{pd} + \sigma_\alpha + \sigma_{pt} + \sigma_{p\alpha} + \sigma_{d\alpha} + \sigma_{2\alpha} + \sigma_{d2\alpha} \\ & + \sigma_{t2\alpha} + \sigma_{3\alpha} - (\sigma_{2n} + \sigma_{2np} + \sigma_{2nd} + \sigma_{2n\alpha} + \sigma_{2n2\alpha}) - 2(\sigma_{3n} + \sigma_{3np} + \sigma_{3n\alpha}) - 3\sigma_{4n} \end{aligned} \quad (\text{C - 1})$$

C - 3 Descriptions simplifiées de la géométrie du RAPTOR dans les fichiers d'entrée du Constructeur et des codes ERE et MCNP

C - 3.1 Fichier d'entrée – Constructeur

```
CARAPTOR.nom RAPTOR
CARAPTOR.fractionDeSelEnCoeur .5
CARAPTOR.fractionDeSelEchangeurs .195
CARAPTOR.volumeDeSelCombustible 4
CARAPTOR.nombreAnneaux 2
Coeur.rapportHauteurSurDiametre 1
Anneau0.type Reflecteur
Anneau0.epaisseur 0.4
Anneau1.type Protection
Anneau1.epaisseur 0.1
Enveloppe.epaisseur 1
```

C - 3.2 Fichier d'entrée – Code ERE

```
FORME FormeCoeur
FormeCoeur.Type ERE_FORME_TypeCylindre
FormeCoeur.Dimension1 0.0
FormeCoeur.Dimension2 0.6827840632552957
FormeCoeur.Dimension3 0.6827840632552957
FORME FormePlenum
FormePlenum.Type ERE_FORME_TypeCylindre
FormePlenum.Dimension1 0.6827840632552957
FormePlenum.Dimension2 1.2802312546018526
FormePlenum.Dimension3 0.0827802539404694
FORME FormeEchangeur
FormeEchangeur.Type ERE_FORME_TypeCylindre
FormeEchangeur.Dimension1 1.1827840632552957
FormeEchangeur.Dimension2 1.2802312546018524
FormeEchangeur.Dimension3 0.5172235553743569
FORME FormeEnveloppe0Haute
FormeEnveloppe0Haute.Type ERE_FORME_TypeCylindre
FormeEnveloppe0Haute.Dimension1 0.0
FormeEnveloppe0Haute.Dimension2 1.2802312546018524
FormeEnveloppe0Haute.Dimension3 0.5
FORME FormeEnveloppe0Basse
FormeEnveloppe0Basse.Type ERE_FORME_TypeCylindre
FormeEnveloppe0Basse.Dimension1 0.0
FormeEnveloppe0Basse.Dimension2 1.2802312546018524
FormeEnveloppe0Basse.Dimension3 0.5
FORME FormeEnveloppe0Laterale
FormeEnveloppe0Laterale.Type ERE_FORME_TypeCylindre
FormeEnveloppe0Laterale.Dimension1 1.2802312546018524
FormeEnveloppe0Laterale.Dimension2 2.280231254601852
FormeEnveloppe0Laterale.Dimension3 1.6827840632552957
FORME FormeReflecteur
FormeReflecteur.Type ERE_FORME_TypeCylindre
FormeReflecteur.Dimension1 0.6827840632552957
FormeReflecteur.Dimension2 1.0827840632552959
FormeReflecteur.Dimension3 0.5172235553743569
FORME FormeProtection
FormeProtection.Type ERE_FORME_TypeCylindre
FormeProtection.Dimension1 1.0827840632552959
FormeProtection.Dimension2 1.182784063255296
FormeProtection.Dimension3 0.5172235553743569
RAPTOR.CELLULE PlenumBas
RAPTOR.PlenumBas.idf_FORME FormePlenum
RAPTOR.PlenumBas.POSITION Pos0PlenumBas
RAPTOR.PlenumBas.Pos0PlenumBas.X 0.0
RAPTOR.PlenumBas.Pos0PlenumBas.Y 0.0
RAPTOR.PlenumBas.Pos0PlenumBas.Z 0.6000038093148263
RAPTOR.CELLULE PlenumHaut
RAPTOR.PlenumHaut.idf_FORME FormePlenum
RAPTOR.PlenumHaut.POSITION Pos0PlenumHaut
RAPTOR.PlenumHaut.Pos0PlenumHaut.X 0.0
RAPTOR.PlenumHaut.Pos0PlenumHaut.Y 0.0
RAPTOR.PlenumHaut.Pos0PlenumHaut.Z -0.6000038093148263
RAPTOR.CELLULE Enveloppe0Haute
RAPTOR.Enveloppe0Haute.idf_FORME FormeEnveloppe0Haute
RAPTOR.Enveloppe0Haute.POSITION Pos0Enveloppe0Haute
RAPTOR.Enveloppe0Haute.Pos0Enveloppe0Haute.X 0.0
```

```
RAPTOOr.Enveloppe0Haute.Pos0Enveloppe0Haute.Y 0.0
RAPTOOr.Enveloppe0Haute.Pos0Enveloppe0Haute.Z 1.1827840632552957
RAPTOOr.CELLULE Enveloppe0Basse
RAPTOOr.Enveloppe0Basse.idf_FORME FormeEnveloppe0Basse
RAPTOOr.Enveloppe0Basse.POSITION Pos0Enveloppe0Basse
RAPTOOr.Enveloppe0Basse.Pos0Enveloppe0Basse.X 0.0
RAPTOOr.Enveloppe0Basse.Pos0Enveloppe0Basse.Y 0.0
RAPTOOr.Enveloppe0Basse.Pos0Enveloppe0Basse.Z -1.1827840632552957
```

C - 3.3 Fichier d'entrée – Code MCNP

```
1000 0 (1) imp:n=0
1001 0 -1 imp:n=1 fill=1
1002 1 -2.13062e+00 -2 3 -4 imp:n=1 u=1
1003 1 -2.13062e+00 -5 2 6 -4 imp:n=1 u=1
1004 1 -2.13062e+00 -5 2 3 -7 imp:n=1 u=1
1005 1 -2.13062e+00 -5 8 7 -6 imp:n=1 u=1
1006 2 -8.00000e+00 -5 4 -9 imp:n=1 u=1
1007 2 -8.00000e+00 -5 10 -3 imp:n=1 u=1
1008 2 -8.00000e+00 -11 5 10 -9 imp:n=1 u=1
1009 2 -8.00000e+00 -12 2 7 -6 imp:n=1 u=1
1010 3 -2.52000e+00 -8 12 7 -6 imp:n=1 u=1
1011 3 -2.52000e+00 -14 13 imp:n=1 u=1
1012 0 #1002 #1003 #1004 #1005 #1006 #1007 #1008 #1009 #1010 #1011 imp:n=1 u=1

1 so 4.560463e+03
2 cz 6.827841e+01
3 pz -6.827841e+01
4 pz 6.827841e+01
5 cz 1.280231e+02
6 pz 5.172236e+01
7 pz -5.172236e+01
8 cz 1.182784e+02
9 pz 1.682784e+02
10 pz -1.682784e+02
11 cz 2.280231e+02
12 cz 1.082784e+02
13 so 3.000000e+02
14 so 4.000000e+02
```

Nous sommes les habitants du Larzac.

Jean-Pierre Fromage, *Les habitants du Larzac*

D

Index sur les notations

Sommaire

D - 1 Lettres latines	XXXIV
D - 2 Lettres grecques	XXXIV
D - 3 Notations diverses ou composites	XXXV
D - 4 Unités	XXXV

D - 1 Lettres latines

	Page		Page
A Nombre de masse d'un noyau	14	$N_{d,i}$ Neutrons disponibles (régénération)	26, 110
c_{flux} Coefficient de flux IME	89	N_i Densité de noyaux	18, 86
\mathcal{C}_i Chaîne d'incinération	27, 108	$N_{n,i}$ Neutrons nécessaires (incinération)	28, 108
C_k Contrainte sur une alimentation	89, 115	$N_{p,i}$ Neutrons produits (incinération)	28, 108
E Énergie	7	P_e Puissance électrique	31, 107
E Potentiel d'oxydoréduction	46	P_{th} Puissance thermique	31, 80
F Matrice fondamentale (Markov)	109	Q Matrice des états transitoires (Markov)	109
f_Z Fraction d'un élément dans le sel	89	Q_{fis} Qualité fissile	115
$J_{\vec{C}}$ Matrice jacobienne	116	$R_{f,i}$ Répartition isotopique des fissions	110
k_{eff} Coefficient de multiplication effectif	19, 88	r_i Rayon ionique	45, 115
k_{∞} Coefficient de multiplication infini	19	S_k Débit d'alimentation	89, 116
k_p Coefficient de multiplication prompt	21	$t_{d,i/j}$ Temps de doublement	111
K_p Coefficient de production (facteur de charge)	172	\vec{V}_X Vecteur isotopique	103
m_i Masse d'un élément	105	v Vitesse des neutrons	18
$m_{r,i}$ Masse ayant réagi	105	V Volume	105
$\dot{m}_{r,i}$ Taux de réaction massique	105	X Symbole chimique d'un noyaux	14
\mathcal{N}_A Nombre d'Avogadro	11, 105	Z Numéro atomique d'un noyaux	14
N Nombre de neutrons d'un noyaux	14		

D - 2 Lettres grecques

	Page		Page
α_i Rapport α	22	π_i Proportion de fission	22, 108
β Fraction de neutrons retardés	21	ρ Densité	44
$\gamma_{i/j}$ Facteur de régénération	110	ρ Réactivité	19
δ_i Bilan de matière mobilisée	107	\sum Somme mathématique	18
$\tilde{\delta}_i$ Bilan de matière mobilisée par MW_{th}	107	$\Sigma_{r,i}$ Section efficace macroscopique	18
ε_i Énergie produite par fission	11, 80	$\sigma_{a,i}$ Section efficace d'absorption	18
η_i Rendement d'incinération	106	$\sigma_{\gamma,i}$ Section efficace de capture	18
λ_i Constante radioactive	18	$\sigma_{f,i}$ Section efficace de fission	18
μ_i Performance d'incinération	107	$\sigma_{s,i}$ Section efficace de diffusion	18
$\tilde{\mu}_i$ Performance d'incinération par TWh_e	107	$\sigma_{r,i}$ Section efficace microscopique	17
ν_i Nombre de neutrons produits par fission	16	τ_i Temps de consommation de la masse initiale	107
$\bar{\nu}_i$ Nombre de neutrons moyens	16	ϕ Flux neutronique scalaire	18, 78
ξ_i Rapport de branchement	25	ψ Flux neutronique angulaire	18
ξ_{242} Rapport de branchement de $l^{242}\text{Am}$	25	Ω Angle des neutrons	18
\prod Produit mathématique	28		

D - 3 Notations diverses ou composites

	Page		Page
(n, f) Fission	15	$\langle \sigma_r \phi \rangle$ Taux de réaction	18, 78
(n, n) Diffusion élastique	17	♥ Cœur	117
(n, n') Diffusion inélastique	17	♻ Couverture	117
(n, γ) Capture radiative	16	🛡 Protection	159
pO ²⁻ Potentiel O ²⁻	45		

D - 4 Unités

	Page		Page
ar Année-réacteur	185	t _{ml} Tonne de métal lourd initial	49
d Jour	24	W _e Watt électrique	29
GW d/t Gigawatt jour par tonne	49	W _{th} Watt thermique	31

Doing things didn't work, not doing things didn't work, and I couldn't predict the future either, so I only had one other choice. Monitor Everything.

Twilight Sparkle, *My Little Pony*

E

Publications et travaux connexes

Sommaire

E - 1	Articles et actes de conférence	XXXVIII
E - 1.1	En premier auteurXXXVIII
E - 1.2	En co-auteurXXXVIII
E - 2	Livrables	XXXVIII
E - 2.1	Projet national ISACXXXVIII
E - 2.2	Projet européen MIMOSAXXXIX
E - 2.3	Projet européen ENDURANCEXXXIX
E - 3	Rapports de stage	XXXIX
E - 3.1	En tant que stagiaireXXXIX
E - 3.2	En tant qu'encadrantXXXIX

E - 1 Articles et actes de conférence

E - 1.1 En premier auteur

- [144] L. CLOT, E. MERLE, A. LAUREAU, D. HEUER, L. TILLARD, G. SENENTZ. New simulation controls for the molten salt reactors related neutronic evolution code REM. *EPJ Web Conf.* **302**, page 05003, 2024.
- [143] L. CLOT, E. MERLE, A. LAUREAU, D. HEUER, L. TILLARD, G. SENENTZ. New model developments for fuel supply strategies in molten salt reactors: Application to the REM depletion code. *EPJ Nuclear Sci. Technol.* **11**, 65, 2025.

E - 1.2 En co-auteur

- [146] P.-E. DUFOUR, D. LECARPENTIER, L. CLOT, S. DELTOUR, A. LAUREAU, J. MARTINET, E. MERLE G. SENENTZ, L. TILLARD ET C. VENARD. A tool to estimate isotopic evolution for actinides transmutation dedicated fast molten salt reactors. *Actes de la conférence internationale SFM 2024*, Vienne, Autriche, 2024.
- [148] J. HALWANI, L. CLOT, M. ALLIBERT, A. BODINER, L. GIOT, A. LAUREAU, E. MERLE, L. TILLARD, F. BERTRAND, E. MARTIN LOPEZ, V. PASCAL, D. GERARDIN, E. COURTIN, H.W. SIKA. Application of the lines of defence method and decay heat calculations to Chloride Molten Salt Reactor ARAMIS-A. *Actes de la conférence internationale ICAPP 2025*, Antibes, France, 2025.
- [117] C. LAGUERRE, B. CARLIER, P. SERVELL, P.-E. DUFOUR, D. LECARPENTIER, L. CLOT, A. ROTH, L. TILLARD, E. MERLE. Benchmarking Molten Salt Reactors Modelling for Americium Transmutation in Fuel Cycle Simulation Studies. *Progress in Nuclear Science and Technology* **8**, pp. 143-148, 2025.
- [97] I. MORLAES, S. LORENZI, S. DEANESI, A. L. SMITH, D. C. VISSER, E. LOSA, J. A. OCÁDIZ FLORES, E. CAPELLI, S. DELPECH, O. BENEŠ, P. SOUČEK, E. GUILLAUT, L. VAN DEN DURPEL, S. DULLA, L. CLOT, E. MERLE, A. LAUREAU, L. GIOT, N. GIRAULT, J. M. HAMY, J. KREPEL, P. RUBIOLO ET C. MAROZZ. Exploring the safety and performance of molten salt reactors for their deployment in the European Union: the MIMOSA and ENDURANCE projects. *EPJ Nuclear Sci. Technol.* **11**, 30, 2025.

E - 2 Livrables

E - 2.1 Projet national ISAC

- [112] P. BOISSEAU, L. CLOT, R. MARLIER, E. MARTIN LOPEZ, V. PASCAL, F. SOUVIGNET. *Esquisse finale et potentiel de transmutation*. Lot 2, Livrable **L2.3**. Projet ISAC, 2025.
- [113] C. VENARD, M. FORGE, J. MARTINET, L. MESTHIVIERS, L. CLOT, A. LAUREAU, E. MERLE, L. TILLARD, P.-E. DUFOUR, D. LECARPENTIER. *Évaluation des solutions de transmutation alternatives*. Lot 2, Livrable **L2.4**. Projet ISAC, 2024.
- [180] L. GIOT, J. HALWANI, E. MERLE, A. LAUREAU, L. CLOT. *Identification des besoins d'amélioration des données nucléaires liées à l'estimation de la puissance résiduelle et propositions d'améliorations*. Lot 2, Livrable **L2.8**. Projet ISAC, 2026.
- [0] L. CLOT. *Études et optimisation de réacteurs à sels fondus incinérateurs : du schéma de calcul neutronique aux scénarios de déploiement*. Lot 2, Livrable **M2.5**. Projet ISAC, 2025.
- [115] B. CARLIER. *Rapport des études de benchmark entre codes de scénarios pour l'intégration des RSF dans le parc électronucléaire français*. Lot 3, Livrable **L3.4**. Projet ISAC, 2024.
- [116] *Scénarios exploratoires et études de sensibilité : synthèse des résultats*. Lot 3, Livrable **L3.8**. Projet ISAC, 2025.

E - 2.2 Projet européen MIMOSA

- [106] L. MESTHIVIERS, E. MERLE, A. LAUREAU, L. CLOT, M. ALLIBERT, E. CAPELLI, S. DELPECH, L. GIOT, D. HEUER, B. MOREL, I. MORLAES, H. PITOIS, G. SENENTZ ET L. TILLARD. *Technical note regarding “First assumptions on molten salt compositions of different MSR configurations”*. Milestone **MS3**. Projet MIMOSA, 2023.
- [107] M.-P. DELAVENU, E. CAPELLI. *Evaluation of the fuel salt reprocessing strategy in synergy with La Hague*. Deliverable **D5.1**. Projet MIMOSA, 2025.
- [108] B. FESSLER. *Identification and quantification of valuable isotopes in molten salt reactors*. Deliverable **D6.1**. Projet MIMOSA, 2024.

E - 2.3 Projet européen ENDURANCE

- [104] E. MERLE, F. ALCARO, M. ALLIBERT, M.-S. CHENAUD, L. CLOT, L. GIOT, Y. GORSSE, B. HOMBOURGER, E. KLINKBY, T. KOOYMAN, A. LAUREAU ET S. LORENZI. *Review of the EU MSR designs*. Deliverable **D1.1**. Projet ENDURANCE, 2025.

E - 3 Rapports de stage

E - 3.1 En tant que stagiaire

- [153] L. CLOT. *Étude des contraintes inhérentes au déploiement massif de réacteurs à sels fondus*. Rapport de stage de 2^e année d'école d'ingénieur, Grenoble INP - Phelma, UGA, 2021. (Réalisé au LPSC de Grenoble.)
- [105] L. CLOT. *Modélisation du recyclage des matières dans les réacteurs à sels fondus*. Rapport de stage de 3^e année d'école d'ingénieur/Maître 2, Grenoble INP - Phelma, UGA, 2022. (Réalisé à Orano, Châtillon.)

E - 3.2 En tant qu'encadrant

- [118] A. ROTH. *Étude de la capacité d'incinération d'une flotte de réacteurs à sels fondus*. Rapport de stage de 2^e année d'école d'ingénieur, Grenoble INP - Phelma, UGA, 2024. (Supervision et encadrement du stage au LPSC de Grenoble.)

Études et optimisation de réacteurs à sels fondus incinérateurs : du schéma de calcul neutronique aux scénarios de déploiement

Studies and optimisation of molten salt burner reactors: from calculation scheme to fuel cycle simulations

Résumé

Les travaux de cette thèse, réalisée au CNRS en partenariat avec Orano et s'inscrivant dans le cadre des projets national ISAC et européen MIMOSA, portent sur l'étude et l'optimisation de réacteurs à sels fondus (RSF) incinérateurs d'actinides mineurs. Les RSF sont une famille de réacteurs nucléaires de IV^e génération à combustible liquide dissout dans un sel solvant fluorure ou chlorure. Ces réacteurs sont très polyvalents et l'une des utilisations étudiées dans le cadre de ces travaux est l'incinération des actinides mineurs produits par les réacteurs conventionnels à eau de II^e et III^e générations et par de futurs réacteurs de IV^e génération. Pour cela, les petits réacteurs à sels chlorures appelés RAPTOR et ARAMIS ont été modélisés.

Dans un premier temps, une mise à jour du schéma de calcul neutronique a été effectuée avec de nouveaux développements dans le code REM, référence française dans les calculs d'évolution adaptés aux RSF. Ils consistent en l'intégration d'une méthode innovante d'ajustement des alimentations en continu pilotées par des contraintes établie sur l'utilisation d'une matrice jacobienne. La stabilité gagnée grâce à ces développements ouvre la voie vers de nouvelles réflexions sur les stratégies d'alimentation des RSF incinérateurs.

Dans un second temps, l'intégration de ces réacteurs dans des scénarios de déploiement électro-nucléaires simulant le parc français historique et une de ses évolutions futures envisageables a été étudiée pour mesurer l'impact de ces RSF sur l'incinération des réserves d'américium produit par les strates de réacteurs à eau pressurisée (REP) et à caloporteur sodium. Plusieurs contextes ont été simulés, tels que la poursuite – ou la relance – de la stratégie nucléaire nationale. Cette flotte de réacteurs incinérateurs permet de stabiliser les réserves d'américium sous conditions, caractérisées dans ce travail, en considérant une séparation isotopique poussée des combustibles usés.

Enfin, un concept innovant de RSF convertisseur de plutonium ex-MOX en plutonium de qualité équivalente ex-UNE a été ébauché pour proposer un éventuel parc mixte symbiotique REP/RSF multirecyclant le plutonium.

Mots-clés : Réacteur à Sels Fondus (RSF), Incinération, Neutronique, Calcul d'évolution, Scénario électronucléaire

Abstract

This PhD thesis, carried out at the CNRS in partnership with Orano and as part of the French ISAC and European MIMOSA projects, focuses on the study and optimisation of molten salt reactors (MSR) for incinerating minor actinides. MSRs are a family of IVth-generation nuclear reactors that use liquid fuel dissolved in a fluoride or chloride solvent salt. These reactors are highly versatile, and one of the uses being studied as part of this work is the incineration of minor actinides produced by conventional IInd- and IIIrd-generation water reactors and by future IVth-generation reactors. To this end, small chloride salt reactors called RAPTOR and ARAMIS have been modelled.

In a first step, the neutronic calculation scheme was updated with new developments in the REM code, the French reference for depletion calculations adapted to MSRs. These consist of the integration of an innovative method for continuously adjusting supply rates based on constraints established using a Jacobian matrix. The stability gained through these developments paves the way for new thinking on supply strategies for MSR burners.

In a second step, the integration of these reactors into nuclear powerplant deployment scenarios simulating the historical French fleet and one of its possible future developments was studied to measure the impact of these MSRs on the incineration of americium reserves produced by pressurised water reactors (PWR) and sodium-cooled reactors. Several contexts were simulated, such as the continuation or relaunch of the national nuclear strategy. This fleet of burner reactors makes it possible to stabilise americium reserves under conditions characterised in this work, considering advanced isotopic separation of spent fuel.

Finally, an innovative concept for an MSR converter of ex-MOX plutonium into ex-ENU plutonium of equivalent isotopic grade has been outlined to propose a possible symbiotic mixed PWR/MSR fleet for multi-recycling plutonium.

Keywords : Molten Salt Reactor (MSR), Incineration, Neutronic, Depletion calculation, Electronuclear scenario



NUCLÉAIRE
& PARTICULES



orano



MIMOSA

