

# Table des matières

Remerciements . . . . .	2
Résumé . . . . .	4
Abstract . . . . .	5
<b>Table des matières</b>	<b>6</b>
<b>Table des figures</b>	<b>10</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>15</b>
<b>INTRODUCTION</b>	<b>21</b>
<b>1 CONTEXTE PHYSIQUE DES ETUDES DE SURETE-CRITICITE</b>	<b>25</b>
1.1 Généralités sur les études de sûreté-criticité . . . . .	25
1.2 Grandeurs neutroniques utiles . . . . .	26
1.2.1 Notion de section efficace . . . . .	28
1.2.1.1 Section efficace macroscopique . . . . .	29
1.2.1.2 Section efficace microscopique . . . . .	29
1.2.1.3 Calcul de sections efficaces . . . . .	30
1.2.2 Notion de résonance . . . . .	32
1.2.3 Effet Doppler . . . . .	33
1.2.4 Notion d'autoprotection . . . . .	34
1.3 Données nucléaires . . . . .	36
1.3.1 Mesures de données neutroniques de base . . . . .	36
1.3.1.1 Mesures différentielles de section efficace . . . . .	37
1.3.1.2 Mesures intégrales de section efficace . . . . .	37
1.3.2 Evaluation des données nucléaires . . . . .	39
1.3.2.1 CONRAD . . . . .	39
1.3.2.1.1 Propagation des incertitudes au cours de l'évaluation des données . . . . .	41
1.3.2.1.2 Prise en compte des expériences intégrales dans l'évaluation . . . . .	41
1.3.2.2 Evaluation JEFF-3.1.1 . . . . .	43
1.3.3 Construction de bibliothèques applicatives . . . . .	45
1.4 Description de la population neutronique : principe de calcul et méthodes numériques . . . . .	48
1.4.1 Equation du transport neutronique . . . . .	48
1.4.1.1 Forme intégral-différentielle . . . . .	48
1.4.1.2 Forme intégrale . . . . .	49
1.4.2 Codes de simulation neutronique déterministes . . . . .	50
1.4.2.1 Données d'entrée et de sortie . . . . .	51
1.4.2.2 Discrétisation de la variable énergétique : formalisme multigroupe . . . . .	51

1.4.2.3	Particularités des sections efficaces partielles utilisées par APOLLO2 . . .	52
1.4.2.4	Discrétisation des variables angulaire et spatiale . . . . .	52
1.4.2.4.1	Méthode des probabilités de collision ( $P_{ij}$ ) pour un groupe d'énergie donné . . . . .	52
1.4.2.4.2	Méthode des caractéristiques (MOC) . . . . .	55
1.4.2.5	Traitement des résonances . . . . .	57
1.4.2.5.1	Formalisme de Livolant-Jeanpierre . . . . .	57
1.4.2.5.2	Méthode des sous-groupes . . . . .	64
1.4.3	Méthode probabiliste Monte-Carlo . . . . .	68
1.5	<b>Calcul de bilan matière en et hors réacteur</b> . . . . .	70
1.5.1	Sous irradiation . . . . .	70
1.5.2	Hors flux . . . . .	71
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	72
<b>2</b>	<b>OUTILS DE CALCUL NEUTRONIQUE POUR LA SURETE-CRITICITE</b>	<b>75</b>
2.1	<b>Transport neutronique</b> . . . . .	76
2.1.1	Produit APOLLO2.8/SHEM-MOC/CEA2005V4.1 . . . . .	76
2.1.1.1	Présentation générale et performances . . . . .	76
2.1.1.1.1	Principe du schéma de calcul SHEM-MOC . . . . .	79
2.1.1.1.2	Maillage énergétique SHEM . . . . .	79
2.1.1.1.3	Géométrie utilisée dans le cadre du calcul 2ème niveau MOC . . . . .	80
2.1.1.2	TRIPOLI-4 : définition, spécificités . . . . .	81
2.2	<b>Calcul de bilan matière</b> . . . . .	82
2.2.1	Description du formulaire d'évolution DARWIN2.3 . . . . .	82
2.2.2	Description du formulaire simplifié d'évolution CESAR 5 . . . . .	84
2.3	<b>Calcul de criticité : Présentation générale du formulaire CRISTAL V2</b> . . . . .	85
2.4	<b>Conclusion</b> . . . . .	87
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	88
<b>3</b>	<b>ETAT DE L'ART DE LA METHODOLOGIE ET DES HYPOTHESES RETENUES POUR LE CALCUL DU CBU</b>	<b>89</b>
3.1	<b>Problématique Crédit Burn-up (CBU)</b> . . . . .	89
3.2	<b>Contexte industriel, statut de prise en compte du CBU et perspectives</b> . . . . .	90
3.3	<b>Méthodologie CBU</b> . . . . .	93
3.3.1	Conditions conservatives d'irradiation . . . . .	95
3.3.2	Choix des isotopes d'intérêt vis-à-vis de la criticité, antiréactivité associée . . . . .	98
3.3.2.1	Actinides . . . . .	98
3.3.2.2	Produits de fission . . . . .	99
3.3.2.3	Composantes actinides et produits de fission comparées UOx/MOx . . . . .	100
3.4	<b>Conclusion</b> . . . . .	100
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	103
<b>4</b>	<b>CONSERVATISME DU BILAN MATIERE EN EVOLUTION</b>	<b>105</b>
4.1	<b>Etude de l'évolution des biais de l'inventaire des isotopes du CBU</b> . . . . .	105
4.2	<b>Méthode de détermination du biais pénalisé et des facteurs correctifs associés au bilan-matière</b> . . . . .	109
4.2.1	Base expérimentale de qualification DARWIN-2.3 pour les combustibles REP-MOx . . . . .	109
4.2.2	Schéma de calcul utilisé dans le cadre de la qualification du bilan matière pour les REP117	

4.2.3	Détermination du taux de combustion . . . . .	119
4.2.4	Détermination des incertitudes . . . . .	119
4.2.5	Biais associé à la qualification des actinides . . . . .	121
4.2.6	Biais associé à la qualification des produits de fission . . . . .	133
4.3	<b>Analyse des données nucléaires des produits de fission métalliques</b> . . . . .	140
4.3.1	Chaîne de calcul . . . . .	142
4.3.2	Analyse par isotope . . . . .	142
4.3.3	Détermination des facteurs correctifs sur le bilan-matière associés . . . . .	164
4.4	<b>Conclusion</b> . . . . .	166
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	169
<b>5</b>	<b>MISE EN OEUVRE DU CBU DANS LES APPLICATIONS REP-MOx</b>	<b>170</b>
5.1	<b>Rappel méthodologique</b> . . . . .	170
5.2	<b>Méthode des Expériences Intégrales et théorie de la représentativité</b> . . . . .	172
5.2.1	Théorie et exemples d'application . . . . .	172
5.2.2	Présentation de l'outil RIB et des développements associés . . . . .	176
5.2.3	Base de données de matrices de covariance . . . . .	179
5.3	<b>Evaluation des biais de calcul liés à l'antiréactivité des actinides</b> . . . . .	184
5.3.1	Sélection d'expériences pertinentes . . . . .	184
5.3.1.1	Expériences critiques relatives à des réseaux de combustible MOx . . . . .	184
5.3.1.2	Programme d'oscillation OSMOSE REP-MOx dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE . . . . .	187
5.3.1.3	Données nucléaires . . . . .	189
5.4	<b>Evaluation des biais de calcul liés à l'antiréactivité des produits de fission</b> . . . . .	189
5.4.1	Sélection d'expériences pertinentes . . . . .	189
5.4.2	Programme d'oscillation CBU REP-MOx dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE . . . . .	190
5.4.2.1	Le réacteur MINERVE . . . . .	191
5.4.2.2	Principe de la méthode d'oscillation . . . . .	192
5.4.2.3	Le réseau R1MOX . . . . .	194
5.4.2.4	Echantillons oscillés . . . . .	196
5.4.3	Interprétation des expériences d'oscillation de produits de fission séparés . . . . .	197
5.4.3.1	Présentation du formulaire dédié PIMS (Pile-oscillation Analysis Tool for the IMprovement of Cross Sections) . . . . .	197
5.4.3.2	Calibration . . . . .	208
5.4.3.3	Comparaison calcul-expérience échantillons : impact des options du schéma d'interprétation . . . . .	210
5.4.3.4	Calcul des Incertitudes . . . . .	227
5.4.3.5	Ecarts calcul-expérience par produit de fission . . . . .	229
5.5	<b>Méthodologie de prise en compte des PF dans les études CBU REP-MOx</b> . . . . .	232
5.5.1	Etat des lieux des données nucléaires disponibles . . . . .	233
5.5.2	Démarche d'élaboration de matrices de covariances réalistes . . . . .	238
5.5.2.1	Réestimation des Données Nucléaires de Base (RDN) . . . . .	239
5.5.2.2	Cas du $^{149}\text{Sm}$ . . . . .	240
5.5.2.3	Cas du $^{103}\text{Rh}$ . . . . .	244
5.5.3	Application à l'étude du cas d'un assemblage MOx . . . . .	248
5.5.3.1	Etude de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ aux sections efficaces . . . . .	248

5.5.3.2	Facteur de représentativité par rapport aux expériences d'oscillation MI- NERVE . . . . .	250
5.6	<b>Conclusion</b> . . . . .	253
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	258
<b>6</b>	<b>APPLICATION DE LA METHODOLOGIE DEVELOPPEE AUX CAS INDUSTRIELS</b>	<b>262</b>
6.1	<b>Présentation des hypothèses associées aux différents cas étudiés</b> . . . . .	262
6.2	<b>Cas d'un château de transport (OECD BUC Benchmark)</b> . . . . .	266
6.2.1	Transposition des biais et incertitudes de la réactivité du cas « château de transport »	268
6.2.2	Evaluation du CBU . . . . .	271
6.3	<b>Cas d'un entreposage en piscine</b> . . . . .	273
6.3.1	Transposition des biais et incertitudes de la réactivité du cas « piscine d'entreposage »	274
6.3.2	Evaluation du CBU . . . . .	276
6.4	<b>Conclusion</b> . . . . .	277
	<b>Bibliographie</b> . . . . .	279
	<b>CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES</b>	<b>280</b>
A	<b>Principales chaînes de filiation</b>	<b>286</b>
B	<b>Le format standard ENDF-6</b>	<b>288</b>
C	<b>Marginalisation rétroactive</b>	<b>291</b>
D	<b>Méthode des échantillons corrélés</b>	<b>292</b>



# Table des figures

1	Cycle du combustible . . . . .	21
2	Linéarité du $k_{inf}$ en fonction du burnup . . . . .	22
3	Importance des produits de fission dans le CBU REP-MOx . . . . .	23
1.1	Modes de contrôle de la criticité . . . . .	27
1.2	Représentation de la notion de section efficace . . . . .	28
1.3	Comparaison des sections efficaces microscopiques de capture de $^{235}\text{U}$ et de $^{238}\text{U}$ . . . . .	29
1.4	Enchaînement des modèles de traitement des sections efficaces . . . . .	31
1.5	Origine des résonances . . . . .	33
1.6	Influence de l'effet Doppler sur la grande résonance de $^{238}\text{U}$ . . . . .	34
1.7	Neutron se ralentissant sans disparaître dans une résonance . . . . .	35
1.8	Phénomène d'autoprotection par rapport à l'énergie et par rapport à l'espace . . . . .	35
1.9	Processus de production et de validation des données nucléaires . . . . .	36
1.10	Complémentarité des expériences différentielles et intégrales . . . . .	38
1.11	Structure du code d'évaluation des données nucléaires CONRAD . . . . .	40
1.12	Comparaison de la section de capture radiative de $^{241}\text{Am}$ JEF-2.2/JEFF-3.1.1 . . . . .	44
1.13	Comparaison de la section de capture radiative du $^{149}\text{Sm}$ JEF-2.2/JEFF-3.1.1 . . . . .	45
1.14	Chaîne de traitement des données nucléaires GALILEE pour les codes déterministe APOLLO2 et probabiliste TRIPOLI-4 . . . . .	47
1.15	Etablissement de la forme intégrale de l'équation de Boltzmann . . . . .	50
1.16	Génération de caractéristique sur le domaine : procédure de tracking . . . . .	55
1.17	Traçage pour le calcul du flux angulaire moyen à l'intérieur d'une région . . . . .	57
1.18	Principe d'homogénéisation dans le code de transport APOLLO2 . . . . .	62
1.19	Obtention par itération des sections efficaces autoprotégées multigroupes . . . . .	63
1.20	Implémentation de la méthode de Livolant-Jeanpierre dans APOLLO2 . . . . .	64
1.21	Exemple de discrétisation d'une cellule pour le calcul d'autoprotection . . . . .	67
1.22	Visualisation du principe d'une table de probabilité . . . . .	68
1.23	Principe de la méthode probabiliste de Monte-Carlo . . . . .	70
2.1	Contenu des bibliothèques CEA2005v4.1 . . . . .	77
2.2	Vérification/Validation/Qualification du code APOLLO2.X . . . . .	78
2.3	Principe du schéma de calcul optimisé REL2005 . . . . .	79
2.4	Géométries multicellule $P_{ij}$ et hétérogène MOC (oscillation dans R1-UO2 MINERVE) . . . . .	81
2.5	Retour sur les données nucléaires . . . . .	82
2.6	Synoptique général du formulaire DARWIN2.3 . . . . .	83
2.7	Synoptique général du formulaire CESAR 5 . . . . .	85
2.8	Le formulaire de criticité CRISTAL V2 . . . . .	86

3.1	Profil de burnup en fonction de la cote axiale de l'assemblage (mesures La Hague sur assemblage UOx EDF) . . . . .	95
4.1	Evolution des concentrations des seize actinides du CBU REP-MOx au cours des quatre cycles d'irradiation dans le crayon central E09 Dampierre 2, TR=0 . . . . .	107
4.2	Evolution des concentrations des 15 PF du CBU REP-MOx au cours des quatre cycles d'irradiation dans le crayon central E09 Dampierre 2, TR=0 . . . . .	108
4.3	Evolution conjointe des concentrations en $^{241}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Am}$ en fonction du temps de refroidissement - « Américiation » . . . . .	108
4.4	Evolution de la concentration en $^{155}\text{Gd}$ en fonction du temps de refroidissement . . . . .	108
4.5	Positionnement des crayons analysés après irradiation dans Saint-Laurent B1 . . . . .	110
4.6	Positionnement des crayons analysés après irradiation dans Dampierre 2 . . . . .	113
4.7	Géométrie multi-cellule du calcul assemblage MOX en évolution CYCLE2008 . . . . .	118
4.8	Importance comparée des différentes sources d'incertitudes ( $1,65\sigma$ – exemple du rapport des concentrations atomiques $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ . . . . .	120
4.9	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	121
4.10	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	122
4.11	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	123
4.12	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{238}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	124
4.13	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	125
4.14	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{240}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	126
4.15	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{241}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	127
4.16	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{242}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	128
4.17	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{237}\text{Np}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	128
4.18	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{241}\text{Am}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	129
4.19	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{242\text{m}}\text{Am}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	130
4.20	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{243}\text{Am}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	131
4.21	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{243}\text{Cm}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	131
4.22	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{244}\text{Cm}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	132
4.23	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{245}\text{Cm}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	133
4.24	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{147}\text{Sm}/^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	134
4.25	Ecarts C/E -1 de $^{149}\text{Sm}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	134

4.26	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{150}\text{Sm} / ^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	135
4.27	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{151}\text{Sm} / ^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	136
4.28	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{152}\text{Sm} / ^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	136
4.29	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{143}\text{Nd} / ^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	137
4.30	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{145}\text{Nd} / ^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	138
4.31	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{133}\text{Cs} / ^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	138
4.32	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{153}\text{Eu} / ^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	139
4.33	Chaîne de filiation du $^{155}\text{Gd}$ . . . . .	139
4.34	Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques $^{155}\text{Gd} / ^{238}\text{U}$ avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée . . . . .	140
4.35	Valeurs de la constante de décroissance du $^{99}\text{Tc}$ . . . . .	155
5.1	Concept de marge de sûreté . . . . .	171
5.2	Facteur de réduction d'incertitude en fonction du rapport incertitude expérimentale sur incertitude due aux données nucléaires de base $\delta_E / \epsilon_E$ pour différentes valeurs du coefficient de représentativité . . . . .	174
5.3	Méthode des Expériences Intégrales . . . . .	175
5.4	IHM RIB . . . . .	177
5.5	Extrait de fichier .amere - matrice du $^{103}\text{Rh}$ ENDF/B-VII.V1 (COMMARA 2.0) condensée à 15 groupes par CadTui . . . . .	178
5.6	Extrait de fichier .matrix - matrice du $^{103}\text{Rh}$ (SCALE-6.1) condensée à 15 groupes par ANGELO-2.0 . . . . .	179
5.7	Interface développée dans RIB pour l'importation de matrices de covariance (ici au format .matrix) . . . . .	179
5.8	Matrice de corrélations et incertitudes multigroupes de la fission du $^{239}\text{Pu}$ - COMAC V0 . . . . .	181
5.9	Matrice de corrélations et incertitudes multigroupes de la capture du $^{240}\text{Pu}$ - évaluation ENDF/B-VII.V1 . . . . .	181
5.10	Matrice de corrélations et incertitudes multigroupes de la fission du $^{241}\text{Pu}$ - évaluation ENDF/B-VII . . . . .	182
5.11	Sensibilités du $k_{\text{eff}}$ à la capture, à la diffusion, à la fission et à la multiplicité pour les principaux isotopes considérés dans les expériences MIX-SOL-THER-003-1 et MIX-SOL-THER-003-2 à 1 groupe - JEF-2.2 et JEFF-3.1.1 . . . . .	184
5.12	Vue du coeur du réacteur MINERVE . . . . .	191
5.13	Coupe horizontale du réacteur MINERVE . . . . .	192
5.14	Principe de la méthode d'oscillation . . . . .	192
5.15	Configuration du réseau R1MOX . . . . .	194
5.16	Spectres neutroniques des différents réseaux considérés . . . . .	195
5.17	Tracé du flux par unité de léthargie dans R1MOX avec PIMS . . . . .	196
5.18	Schéma de référence pour l'interprétation des expériences d'oscillation (PIMS) . . . . .	198
5.19	Géométrie R1MOX MOC SILENE . . . . .	199
5.20	Coupe cellule UO2 périphérique . . . . .	200

5.21	Maillage de cellule de type « moulin à vent » . . . . .	200
5.22	Géométrie RZ équivalente à la géométrie multicellule XY . . . . .	207
5.23	Maillage de la géométrie RZ du dispositif d'oscillation . . . . .	207
5.24	Maillage de la géométrie RZ équivalente – géométrie axialement hétérogène . . . . .	208
5.25	Principe d'ajustement tenant compte des différentes incertitudes pour l'étalonnage du signal expérimental . . . . .	210
5.26	Section efficace microscopique de capture du $^{143}\text{Nd}$ en fonction de l'énergie, comparaison ENDF/B-VII.V0 / JEFF3.1.1 . . . . .	218
5.27	Impact du nombre de couronnes dans l'échantillon sur le creusement du flux . . . . .	226
5.28	Corrélations et incertitudes associées à la capture du $^{155}\text{Gd}$ dans COMAC V0 . . . . .	234
5.29	Processus de condensation de 44 à 15 groupes des matrices au format .matrix utilisées par SCALE . . . . .	238
5.30	Interface du logiciel RDN – sélection des expériences et des paramètres . . . . .	240
5.31	Matrice « a priori » des corrélations et incertitudes du $^{149}\text{Sm}$ ENDF/B-VII.V1 (COMMARA-2.0) associée à la capture radiative condensée à 15 groupes avec CadTui . . . . .	241
5.32	Profils de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la capture du $^{149}\text{Sm}$ - assemblage REP-MOx Dampierre-2, TC=50 GWj/t, TR=0 . . . . .	241
5.33	Profils de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la capture du $^{149}\text{Sm}$ contenu dans les échantillons Sm9 et SmNAT - réseau R1MOX du réacteur MINERVE - programme CBU . . . . .	242
5.34	Matrice de covariance « a posteriori » du $^{149}\text{Sm}$ implémentée dans l'outil RIB . . . . .	242
5.35	Matrice « a priori » des corrélations et incertitudes du $^{103}\text{Rh}$ ENDF/B-VII.V1 (COMMARA-2.0) associée à la capture radiative condensée à 15 groupes avec CadTui . . . . .	244
5.36	Section efficace de capture du $^{103}\text{Rh}$ - évaluation JEFF-3.1.1 . . . . .	245
5.37	Profil de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la capture du $^{103}\text{Rh}$ dans le réseau R1UO2 du réacteur MINERVE - Programme MAESTRO . . . . .	245
5.38	Profils de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la capture du $^{103}\text{Rh}$ dans les réseaux R1MOx et R1UO2 du réacteur MINERVE - Programme CBU . . . . .	246
5.39	Matrice de covariance « a posteriori » du $^{103}\text{Rh}$ implémentée dans l'outil RIB . . . . .	246
5.40	Sensibilité du $k_{\text{eff}}$ aux différentes réactions des principaux isotopes du CBU REP-MOx - 50 GWj/t TR=0 . . . . .	249
5.41	Evolution de la sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la section de capture des principaux isotopes du CBU REP-MOx . . . . .	249
5.42	Flux dans le réseau R1MOX et dans un assemblage MOx Dampierre 2 à froid - 50 GWj/t, fin d'irradiation . . . . .	250
5.43	Comparaison des profils de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la capture du $^{149}\text{Sm}$ - échantillons Sm9 et SmNAT dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE (à droite) et assemblage REP-MOx Dampierre-2, TC=50 GWj/t, TR=0 (à gauche) . . . . .	251
5.44	Comparaison des profils de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la capture du $^{155}\text{Gd}$ - échantillon Gd5 dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE (à droite) et assemblage REP-MOx Dampierre-2, TC=50 GWj/t, TR=0 (à gauche) . . . . .	251
5.45	Section de capture du $^{149}\text{Sm}$ - évaluation JEFF-3.1.1 . . . . .	251
5.46	Section de capture du $^{155}\text{Gd}$ - évaluation JEFF-3.1.1 . . . . .	252
5.47	Profil de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la capture du $^{103}\text{Rh}$ - assemblage REP-MOx Dampierre-2, TC=50 GWj/t, TR=0 . . . . .	252
5.48	Profil de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la capture du $^{103}\text{Rh}$ dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE - Programme CBU . . . . .	253
5.49	Profil de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ à la capture du $^{103}\text{Rh}$ dans le réseau R1UO2 du réacteur MINERVE - Programme MAESTRO . . . . .	253

5.50	Ecarts C/E-1 (en %) des isotopes dopants étudiés dans le cadre du programme CBU dans R1UO2 et R1MOX – calculs JEFF-3.1.1 . . . . .	256
6.1	Château de transport avec zonage des assemblages MOx - vue de dessus . . . . .	266
6.2	Flux dans le château de transport contenant 21 assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t - TR= 5 ans . . . . .	270
6.3	Profil de sensibilité- château de transport contenant 21 assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t - TR= 5 ans . . . . .	271
6.4	Motif piscine d'entreposage avec zonage des assemblages MOx– vue de dessus . . . . .	273
6.5	Flux dans l'alvéole de la piscine d'entreposage contenant 9 REP-MOx irradiés à 45 GWj/t - TR= 5 ans . . . . .	276
6.6	Profil de sensibilité- alvéole de la piscine d'entreposage contenant 9 REP-MOx irradiés à 45 GWj/t - TR= 5 ans . . . . .	276
6.7	Ecarts C/E-1 (en %) des isotopes dopants étudiés dans le cadre du programme CBU dans R1UO2 et R1MOX – calculs JEFF-3.1.1 . . . . .	283
A.1	Chaîne d'évolution simplifiée de l'uranium . . . . .	286
A.2	Chaîne de filiation du $^{149}\text{Sm}$ . . . . .	287
A.3	Chaîne de filiation du $^{155}\text{Gd}$ . . . . .	287

# Liste des tableaux

1.1	Exemples de sections efficaces microscopiques pour des isotopes intéressant les problématiques de criticité . . . . .	30
1.2	Modifications principales apportées dans JEFF-3.1.1 par rapport à JEF-2.2 pour les actinides du CBU REP-UOx et REP-MOx . . . . .	43
1.3	Modifications principales apportées dans JEFF-3.1.1 par rapport à JEF-2.2 pour les 15 produits de fission du CBU REP-UOx et REP-MOx . . . . .	44
1.4	Comparaison solveurs APOLLO2 Pij et MOC (CEA2005) . . . . .	55
2.1	Codes utilisés pour les calculs CBU dans les principaux pays impliqués . . . . .	76
2.2	Comparaison solveurs APOLLO2 $P_{ij}$ et MOC (CEA2005) . . . . .	78
2.3	Comparaison $k_{inf}$ APOLLO2 CEA2005 XMAS / SHEM . . . . .	80
2.4	Domaine d'application des calculs d'évolution simplifiés CESAR 5 des REP 17 x 17 . . . . .	85
3.1	Statut des différents benchmarks réalisés par le groupe d'experts CBU OCDE/AEN . . . . .	91
3.2	Statut comparé du CBU REP UOx et MOx (entreposage, transport, retraitement) dans le monde - mise à jour 2013 . . . . .	92
3.3	Comparaison des méthodologies de prise en compte du CBU . . . . .	94
3.4	Comparaison des conditions conservatives d'irradiation (UOx : couplage DARWIN2.0-CRISTALV1, MOx : couplage CESAR5-CRISTALV1) . . . . .	95
3.5	Actinides et effet en réactivité associé, BU = 40 GWj/t, TR = 5 ans . . . . .	98
3.6	Produits de fission et effet en réactivité associé, BU = 40 GWj/t, TR = 5 ans . . . . .	99
3.7	Valeurs comparatives CBU UOx et MOx, BU=40 GWj/t, TR=1 an . . . . .	100
4.1	Composition des pastilles MOX SLB1 à la date de fabrication . . . . .	111
4.2	Durée des cycles SLB1 et taux de combustion moyen au déchargement . . . . .	111
4.3	Taux de combustion de chaque échantillon de combustibles irradiés retenus SLB1 (TC d'interprétation) et indicateur de burn-up utilisé . . . . .	112
4.4	Composition des pastilles MOX Dampierre à la date de fabrication . . . . .	114
4.5	Historique de fonctionnement de la tranche Dampierre 2 . . . . .	115
4.6	Taux de combustion de chaque échantillon de combustibles irradiés Dampierre 2 retenus (TC d'interprétation) et indicateur de burn-up utilisé . . . . .	116
4.7	Répartition des échantillons disponibles pour chaque isotope du CBU REP-MOx . . . . .	116
4.8	Options de calcul APOLLO2 pour l'interprétation d'échantillons de combustible irradié REP-MOX . . . . .	118
4.9	Evaluation des différentes sources d'incertitudes - exemple du rapport des concentrations atomiques $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ . . . . .	120
4.10	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	121



4.11	Tendance des écarts C/E-1 (%) pour le rapport de concentrations atomiques $^{235}\text{U}$ / $^{238}\text{U}$ en fonction du TC et biais pénalisé . . . . .	122
4.12	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{236}\text{U}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	122
4.13	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{238}\text{Pu}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	123
4.14	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{239}\text{Pu}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	124
4.15	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{240}\text{Pu}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	125
4.16	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{241}\text{Pu}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	126
4.17	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{242}\text{Pu}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	127
4.18	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{237}\text{Np}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	128
4.19	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{241}\text{Am}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	129
4.20	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{242\text{m}}\text{Am}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	130
4.21	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{243}\text{Am}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	130
4.22	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{243}\text{Cm}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	131
4.23	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{244}\text{Cm}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	132
4.24	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{245}\text{Cm}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	132
4.25	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{147}\text{Sm}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	133
4.26	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{149}\text{Sm}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	134
4.27	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{150}\text{Sm}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	135
4.28	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{151}\text{Sm}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	135
4.29	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{152}\text{Sm}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	136
4.30	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{143}\text{Nd}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	137
4.31	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{145}\text{Nd}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	137
4.32	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{133}\text{Cs}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	138
4.33	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{153}\text{Eu}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	139
4.34	Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques $^{155}\text{Gd}$ / $^{238}\text{U}$ et biais pénalisé . . . . .	140

4.35	Importance des produits de fission métalliques dans le cadre du CBU REP-MOx BU=40GWj/t TR=5 ans . . . . .	141
4.36	Synthèse des voies de formation du Rhodium 103 . . . . .	143
4.37	Détail des trois principales voies de formation du $^{103}\text{Rh}$ . . . . .	143
4.38	Analyse des voies de formation du $^{103}\text{Rh}$ : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les trois principales têtes de chaîne . . . . .	143
4.39	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{103}\text{Nb}$ . . . . .	143
4.40	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	144
4.41	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{103}\text{Mo}$ . . . . .	144
4.42	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	144
4.43	Rendements de fission cumulés dans les domaines thermique et rapide du $^{103}\text{Zr}$ . . . . .	145
4.44	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	145
4.45	Données de décroissance des isotopes contribuant à la formation du $^{103}\text{Rh}$ . . . . .	146
4.46	Valeurs de section efficace (n, $\gamma$ ) du $^{103}\text{Rh}$ à 2200 m/s . . . . .	146
4.47	Synthèse des voies de formation de l'Argent 109 . . . . .	147
4.48	Détail des voies de formation de l' $^{109}\text{Ag}$ . . . . .	147
4.49	Analyse des voies de formation de formation de l' $^{109}\text{Ag}$ : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les deux principales têtes de chaîne . . . . .	147
4.50	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{109}\text{Ru}$ . . . . .	148
4.51	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	148
4.52	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{109}\text{Tc}$ . . . . .	148
4.53	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	148
4.54	Données de décroissance des isotopes contribuant à la formation de l' $^{109}\text{Ag}$ . . . . .	150
4.55	Valeurs de section efficace (n, $\gamma$ ) du $^{109}\text{Ag}$ à 2200 m/s . . . . .	151
4.56	Synthèse des voies de formation du Technétium 99 . . . . .	152
4.57	Détail des voies de formation du $^{99}\text{Tc}$ . . . . .	152
4.58	Analyse des voies de formation du $^{99}\text{Tc}$ : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les deux principales têtes de chaîne . . . . .	152
4.59	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{99}\text{Zr}$ . . . . .	153
4.60	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	153
4.61	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{99}\text{Y}$ . . . . .	153
4.62	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	153
4.63	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{99}\text{Nb}$ . . . . .	154
4.64	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	154
4.65	Données de décroissance des isotopes contribuant à la formation du $^{99}\text{Tc}$ . . . . .	155
4.66	Valeurs de section efficace (n, $\gamma$ ) du $^{99}\text{Tc}$ à 2200 m/s . . . . .	156
4.67	Synthèse des voies de formation du Ruthénium 101 . . . . .	156
4.68	Détail des voies de formation du $^{101}\text{Ru}$ . . . . .	157
4.69	Analyse des voies de formation de formation du $^{101}\text{Ru}$ : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les deux principales têtes de chaîne . . . . .	157
4.70	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{101}\text{Zr}$ . . . . .	157
4.71	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	157
4.72	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{101}\text{Nb}$ . . . . .	158
4.73	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	158
4.74	Valeurs des données de décroissance des isotopes alimentant le $^{101}\text{Ru}$ . . . . .	159
4.75	Valeurs de section efficace (n, $\gamma$ ) du $^{101}\text{Ru}$ à 2200 m/s . . . . .	159
4.76	Synthèse des voies de formation du Molybdène 95 . . . . .	160
4.77	Détail des voies de formation du $^{95}\text{Mo}$ . . . . .	160



4.78	Analyse des voies de formation de formation du $^{95}\text{Mo}$ : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les deux principales têtes de chaîne . . . . .	160
4.79	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{95}\text{Sr}$ . . . . .	160
4.80	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	161
4.81	Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du $^{95}\text{Y}$ . . . . .	161
4.82	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	161
4.83	Rendements de fission cumulés dans les domaines thermique et rapide du $^{95}\text{Rb}$ . . . . .	162
4.84	Ecarts entre les différentes évaluations considérées . . . . .	162
4.85	Valeurs des données de décroissance des isotopes alimentant le $^{95}\text{Mo}$ . . . . .	163
4.86	Valeurs de section efficace ( $n,\gamma$ ) du $^{95}\text{Mo}$ à 2200 m/s . . . . .	163
4.87	Valeurs des facteurs correctifs relatifs au bilan-matière des produits de fission métalliques . .	164
4.88	Valeurs des facteurs correctifs relatifs au bilan-matière des produits de fission métalliques . .	164
4.89	Ecarts CESAR-5.3/DARWIN-2.3 pour un combustible REP-MOx (teneur Pu+ $^{241}\text{Am}$ 5%), 60 GWj/t . . . . .	165
4.90	Facteurs correctifs isotopiques intégrant les écarts CESAR-5.3/DARWIN-2.3 . . . . .	166
4.91	Facteurs correctifs isotopiques . . . . .	167
5.1	Apport de la Méthodologie des Expériences Intégrales en terme de réduction d'incertitudes (grandeurs en $\Delta k_{eff}$ ) . . . . .	176
5.2	Maillage de condensation à 15 groupes utilisé dans RIB . . . . .	178
5.3	Expériences MIX-SOL-THERM sélectionnées . . . . .	183
5.4	Comparaison des représentativités et incertitudes a priori et a posteriori obtenues respectivement avec les matrices de covariances associées à JEFF-3.1.1 et JEF-2.2 implantées dans RIB pour des solutions de nitrate de plutonium . . . . .	183
5.5	Expériences MIX-COMP-THERM sélectionnées . . . . .	186
5.6	Comparaison calcul-expérience pour les benchmarks MIX-COMP-THERM sélectionnés . .	187
5.7	Ecarts C/E-1 (%) sur l'effet en réactivité des actinides mineurs dans MINERVE-OSMOSE .	187
5.8	Facteurs de pénalité JEFF-3.1.1 à appliquer dans les combustibles irradiés au poids en réactivité du $^{237}\text{Np}$ et de l' $^{243}\text{Am}$ . . . . .	188
5.9	Facteurs de pénalité issus de la qualification de l'effet en réactivité des actinides d'un combustible REP-MOx . . . . .	189
5.10	Recensement des expériences mettant en oeuvre les PF du CBU – applications REP . . . . .	190
5.11	Composition isotopique du plutonium des crayons MOx au 01/07/98 . . . . .	195
5.12	Caractéristiques spectrales des configurations R1MOX, R1UO2 et REB dans MINERVE . .	195
5.13	Caractéristiques des lots d'échantillons d'oscillation MINERVE . . . . .	197
5.14	Sections de capture dans le domaine thermique d'isotopes du Samarium et du Ruthénium JEFF-3.1.1 . . . . .	211
5.15	Echantillons non exploitables . . . . .	211
5.16	Impact du choix du solveur - comparaison $P_{ij}$ et MOC . . . . .	212
5.17	Jeux de paramètres de traçage des caractéristiques . . . . .	212
5.18	Influence des paramètres de calcul du flux en MOC (paramètres de traçage des trajectoires) .	213
5.19	Influence du choix de la méthode de calcul de la réactivité . . . . .	214
5.20	Comparaison des écarts calcul expérience (C-E/E) échantillon JEF2.2 / JEFF-3.1.1- solveur MOC . . . . .	215
5.21	Comparaison des écarts calcul expérience (C-E/E) échantillon JEFF3.1.1 / ENDF/B-VII.V0 dans le réseau R1MOX . . . . .	216
5.22	Comparaison des sections de capture thermiques et des intégrales de résonance pour les produits de fission considérés JEFF3.1.1 / ENDF/B-VII.V0 . . . . .	217

5.23	Comparaison des écarts calcul expérience (C-E/E) échantillon JEFF3.1.1 / ENDF/B-VII.V0 dans le réseau R1UO2 . . . . .	218
5.24	Comparaison des écarts calcul-expérience isotope dopant seul dans R1MOX et R1UO2 avec JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.V0 . . . . .	219
5.25	Influence du terme de fuite . . . . .	219
5.26	Impact de la prise en compte de la correction des effets 3D . . . . .	220
5.27	Effet en réactivité des isotopes présents dans les échantillons, pour 100 pcm d'antiréactivité . . . . .	221
5.28	Impact de la maîtrise du bilan matière des impuretés . . . . .	222
5.29	Impact de la présence d'eau dans les échantillons césium compactés . . . . .	222
5.30	Impact de l'autoprotection – réseau R1MOX . . . . .	224
5.31	Impact de la sélection des isotopes à autoprotéger – comparaison des modes d'autoprotection paramétré et rapide . . . . .	224
5.32	Influence de la prise en compte de l'autoprotection en dessous de 22 eV – réseau R1MOX . . . . .	225
5.33	Influence de la prise en compte de l'autoprotection en dessous de 22 eV – réseau R1UO2 . . . . .	225
5.34	Impact de l'autoprotection – réseau R1UO2 . . . . .	226
5.35	Comparaison du temps de calcul méthode $P_{ij}$ / méthode MOC . . . . .	227
5.36	Décomposition des incertitudes à $2\sigma$ pour les oscillations dans les réseaux R1MOX et R1UO2 du programme CBU . . . . .	228
5.37	Ecart C/E-1 $\pm 2\sigma$ (%) par produit de fission dans les réseaux R1MOX et R1UO2-calculs effectués avec l'évaluation JEFF-3.1.1 . . . . .	229
5.38	Tendance sur la section efficace de capture du $^{103}\text{Rh}$ - interprétation du programme MAESTRO . . . . .	232
5.39	Comparaison des valeurs de la section de capture (en barn) du $^{103}\text{Rh}$ au point thermique des principales évaluations de données nucléaires à la valeur mesurée lors du programme MAESTRO . . . . .	232
5.40	Origine des données de covariance des 13 PF du CBU traités dans la bibliothèque COMMARA-2.0 . . . . .	235
5.41	Origine des données de covariance des 13 PF du CBU traités dans l'évaluation ENDF/B-VII.V1 . . . . .	236
5.42	Origine des données de covariance SCALE-6.1 des 15 PF du CBU . . . . .	237
5.43	Données de covariances disponibles dans les différentes bases de données . . . . .	237
5.44	Estimation fournie par RDN pour l'incertitude de la section de capture du $^{149}\text{Sm}$ . . . . .	242
5.45	Expériences différentielles sélectionnées pour l'élaboration de la matrice de covariance « a priori » du $^{149}\text{Sm}$ avec CONRAD . . . . .	243
5.46	Estimation fournie par RDN pour la section de capture du $^{103}\text{Rh}$ . . . . .	246
5.47	Facteurs de pénalité issus de la qualification de l'effet en réactivité des produits de fission dans MINERVE d'un combustible REP-MOX . . . . .	248
5.48	Coefficients de représentativité de l'empoisonnement des principaux produits de fission du CBU REP-MOX dans le réseau du réacteur MINERVE par rapport à une application assemblage MOX AFA - 50 GWj/t, TR=0 . . . . .	250
5.49	Ecart C/E-1 (%) par produit de fission dans le réseau R1MOX - calculs effectués avec l'évaluation JEFF-3.1.1 . . . . .	255
5.50	Schéma d'interprétation - Synthèse des impacts . . . . .	256
6.1	Vecteurs plutonium - assemblages MOx Saint-Laurent B1 . . . . .	262
6.2	Paramètres d'irradiation du calcul d'évolution des assemblages MOx AFA - Cas Best Estimate . . . . .	263
6.3	Profil de taux de combustion moyen issu de mesures en puits de burn-up à l'usine de La Hague (combustible UOx) . . . . .	263
6.4	Profil de taux de combustion pénalisant issu de mesures en puits de burn-up à l'usine de La Hague (combustible UOx) en fonction de la cote H de l'assemblage considéré . . . . .	264

6.5	Paramètres d'irradiation du calcul d'évolution des assemblages MOx AFA - cas conservatif .	264
6.6	Domaine de validité de la BBL n° 201 de CESAR5.1 . . . . .	267
6.7	Vecteurs plutonium enveloppe . . . . .	267
6.8	CBU Conservatif et Best Estimate d'un château de transport contenant des assemblages REP-MOx avec prise en compte d'un profil de taux de combustion . . . . .	267
6.9	Pénalité à appliquer sur l'antiréactivité de chaque actinide (BU=45GWj/t, TR=5 ans) - cas château de transport . . . . .	268
6.10	Représentativité et incertitudes calculées par RIB pour les benchmarks ICSBEP sélectionnés	268
6.11	Réduction d'incertitude sur la capture du <sup>239</sup> Pu dans les groupes 13,14 et 15 - application château de transport . . . . .	269
6.12	Pénalité à appliquer sur l'antiréactivité de chaque produit de fission (BU=45GWj/t, TR=5 ans) - cas château de transport . . . . .	269
6.13	Représentativité de l'empoisonnement du <sup>149</sup> Sm, du <sup>103</sup> Rh et du <sup>155</sup> Gd mesuré dans MI-NERVE calculé par RIB - cas château de transport . . . . .	270
6.14	Effet en réactivité de certains conservatismes de la chaîne de calcul - cas château de transport (BU=45 GWj/t, TR=5 ans) . . . . .	271
6.15	CBU Conservatif et Best Estimate d'un château de transport contenant des assemblages REP-MOx avec prise en compte d'un profil de taux de combustion . . . . .	272
6.16	CBU Conservatif et Best Estimate d'un entreposage en piscine d'assemblages REP-MOx . .	273
6.17	Pénalité à appliquer sur l'antiréactivité de chaque actinide (BU=45GWj/t, TR=5 ans) - cas piscine . . . . .	274
6.18	Représentativité et incertitudes calculées par RIB pour les benchmarks ICSBEP sélectionnés - cas piscine d'entreposage . . . . .	274
6.19	Pénalité à appliquer sur l'antiréactivité de chaque produit de fission (BU=45GWj/t, TR=5 ans) - cas piscine . . . . .	275
6.20	Représentativité de l'empoisonnement du <sup>149</sup> Sm, du <sup>103</sup> Rh et du <sup>155</sup> Gd mesuré dans MI-NERVE calculé par RIB - cas piscine d'entreposage . . . . .	275
6.21	Effet en réactivité des facteurs correctifs isotopiques et des facteurs de pénalité - cas piscine (BU=45 GWj/t, TR=5 ans) . . . . .	277
6.22	CBU Conservatif et Best Estimate d'un entreposage en piscine d'assemblages REP-MOx . .	277
6.23	CBU conservatif et Best Estimate d'une piscine d'entreposage et d'un château de transport d'assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t et refroidis 5 ans . . . . .	277
6.24	CBU conservatif et Best Estimate d'une piscine d'entreposage et d'un château de transport d'assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t et refroidis 5 ans . . . . .	284
B.1	Principaux <i>FILE</i> ( <i>MF</i> ) d'intérêt . . . . .	288
B.2	Principaux <i>MT</i> d'intérêt . . . . .	289
B.3	Codes Matériau <i>MAT</i> des isotopes du CBU et de « structure » utilisés dans l'outil RIB . . . .	290

# INTRODUCTION

L'acceptabilité par l'Autorité de Sûreté Nucléaire d'un dossier de mise en œuvre d'une installation ou d'un dispositif mettant en œuvre des matières fissiles (usines, laboratoires, emballages de transport) dépend des arguments avancés dans les dossiers réalisés par l'exploitant pour en garantir la sous-criticité. En France, la Règle Fondamentale de Sûreté (RFS) n° I.3.c constitue la référence méthodologique pour la prévention des risques de criticité, pour les concepteurs et pour les exploitants d'installations suivantes (Figure 1) :

- usine d'enrichissement du combustible ;
- usine de fabrication du combustible ;
- usine de retraitement (dissolveur, piscines) ;
- stockage des coques (tronçons de gaine des éléments combustibles cisailés) pouvant être recouvertes de poussière de combustible ;
- piscines d'entreposage du combustible.

Les étapes concernant l'uranium naturel (extraction, concentration, conversion) sont exclues de son domaine d'application (l'accident de criticité du fait de la faible teneur de celui-ci en  $^{235}\text{U}$  fissile (0.7%) qui ne peut conduire à l'amorçage et l'entretien d'une réaction en chaîne que sous certaines conditions très spécifiques de modération et de géométrie non satisfaites à ce stade du cycle) tout comme les réacteurs.

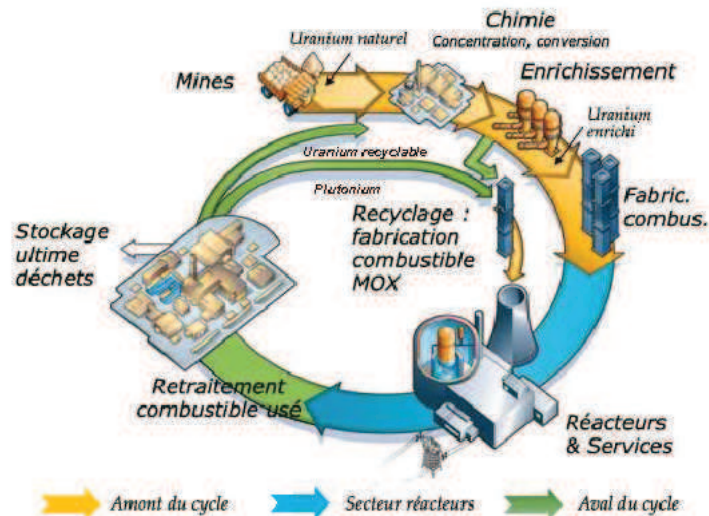


Figure 1 – Cycle du combustible

Le respect de la sous-criticité d'une installation ou d'un dispositif est démontré grâce à une étude de sûreté-criticité définie suivant une approche conservatrice. Celle-ci doit garantir que, quelles que soient les conditions d'exploitation (normales ou accidentelles), la valeur du rapport entre le nombre de neutrons produits par fission et le nombre de neutrons perdus par fuite ou absorption, appelé facteur de multiplication

effectif et noté «  $k_{\text{eff}}$  »<sup>1</sup>, des configurations étudiées soit inférieure à une limite fixée selon une norme établie et implique la considération de facteurs de pénalité pour son calcul. Le résultat du calcul de criticité dépend de la composition du combustible considéré. Dans le cas de l'entreposage en piscine, du transport et du retraitement des combustibles irradiés, une approche très conservatrice consiste généralement à considérer pour le calcul de criticité leurs compositions à l'état neuf. Or, des études ont montré que la prise en compte du caractère irradié des assemblages et notamment de la formation d'actinides et de produits de fission absorbants conduit à gagner des marges importantes en terme de dimensionnement des installations (densification des piscines, optimisation et allègement de la structure des châteaux de transport) et donc à un gain économique substantiel pour l'industriel tout en maintenant le même niveau de sûreté (Figure 2). Cette prise en compte de l'antiréactivité due à la consommation des matières fissiles initialement présentes lors de l'irradiation en réacteur, et à la formation d'isotopes absorbants ( $^{236}\text{U}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  et produits de fission notamment) est appelée « Crédit Burn-up »<sup>2</sup> (CBU). Le Crédit Burn-up est donc une méthode permettant d'évaluer plus précisément le risque de criticité.

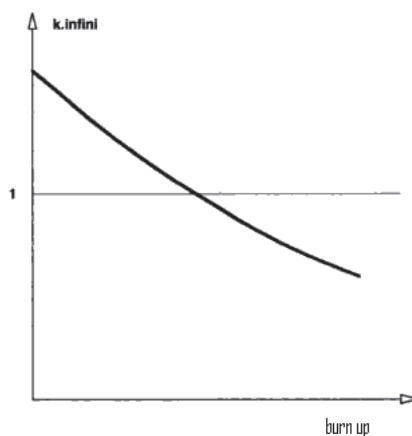


Figure 2 – Linéarité du  $k_{\text{inf}}$  en fonction du burnup

Actuellement, la mise en œuvre du CBU en France est limitée à la dissolution des assemblages REP-UOx à l'usine de La Hague ainsi qu'au transport et à l'entreposage mais avec un burn-up limité à 3,2 MWj/t. Cette méthode CBU est restreinte à « Actinide Only » en supposant un taux de combustion<sup>3</sup> uniforme des assemblages. En 2003, une nouvelle méthodologie plus rigoureuse et moins pénalisante de prise en compte du Crédit Burn-up (CBU) a été développée et validée au CEA en partenariat avec AREVA-NC pour les combustibles REP-UOx afin de tenir compte de la baisse de réactivité due à l'usure du combustible dans les études de sûreté-criticité. L'originalité de cette méthodologie repose d'une part sur la prise en compte d'un profil axial conservatif du burnup et d'autre part sur l'utilisation de facteurs correctifs isotopiques. Ces facteurs isotopiques sont dérivés des études de qualification des codes de neutronique du CEA/DEN. Leur détermination est basée sur des programmes de grande précision d'analyses isotopiques de produits de fission et de noyaux lourds sur des tronçons de combustibles REP irradiés. En se basant sur cette chaîne de calcul et avec le soutien technique du CEA/SPRC, une application industrielle mettant en œuvre le CBU incluant six produits de fission pour le dimensionnement et l'agrément de châteaux de transport d'assemblages UOx a

1. Lorsque le facteur de multiplication est évalué en négligeant les fuites de neutrons, il est appelé « facteur de multiplication infini » et noté «  $k_{\text{inf}}$  ». Il s'agit du rapport du nombre de neutrons d'une génération au nombre de neutrons de la génération précédente dans un milieu infini.

2. Le burnup est l'énergie fournie par la combustion d'une tonne de combustible nucléaire. Il est exprimé en mégawatt jour par tonne de combustible (MWj/t).

3. Le taux de combustion, ou combustion massique, est le terme français pour désigner le burnup.

été étudiée par AREVA-TN et récemment approuvée par l'Autorité de Sûreté Allemande BfS (Bundesamt für Strahlenschutz), un premier chargement étant prévu en 2014.

Cependant, la tendance actuelle d'augmentation des besoins en capacité d'entreposage des piscines de l'usine de La Hague et d'augmentation des volumes de combustibles MOx à recycler associée à l'augmentation des teneurs en plutonium de ces combustibles dans le cadre de l'optimisation de la gestion du parc électrogène français conduit à éveiller l'intérêt des industriels pour le CBU des combustibles REP-MOx, pour les problématiques entreposage, transport et retraitement. En France, de nombreuses études réalisées dans le cadre de collaborations entre organismes français de recherche (CEA), industriels (EDF, AREVA) et IRSN mais aussi au niveau international sous l'égide de l'Organisation de Coopération et de Développement Economiques (OCDE) tendent à définir les méthodologies de mise en œuvre du CBU. Parmi les pays impliqués dans cette démarche figurent, outre la France, l'Allemagne, les Etats-Unis, le Japon, la Suisse et le Royaume-Uni. Initialement, elles ont porté sur le combustible UOx pour être ensuite étendues au combustible MOx utilisé en gestion mixte UOx/MOx dans plusieurs réacteurs français. De manière générale, ces études ont montré l'intérêt de la prise en compte des produits de fission en plus des actinides dans les études de sûreté-criticité. C'est particulièrement le cas pour les assemblages REP-MOx. En effet, dans ce cas, environ la moitié du gain en antiréactivité des combustibles irradiés est due à quinze produits de fission (PF) ( $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{150}\text{Sm}$ ), dont une forte contribution du  $^{149}\text{Sm}$  et du  $^{155}\text{Gd}$  comme le montre la Figure 3.

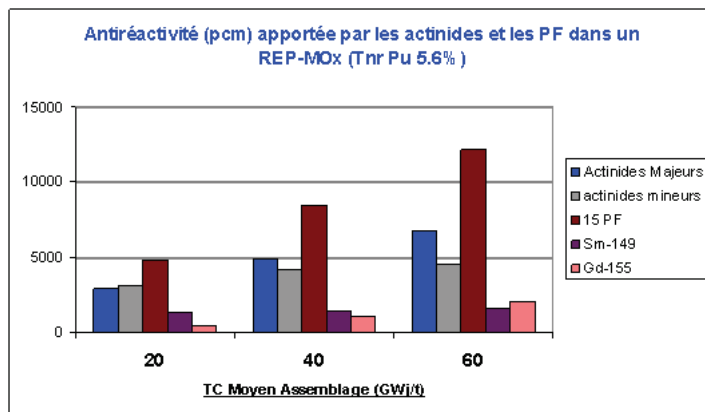


Figure 3 – Importance des produits de fission dans le CBU REP-MOx

Le rôle majeur de ces PF pour le CBU des combustibles REP-MOx nécessite d'apporter un soin tout particulier à l'évaluation du biais de calcul du bilan matière et de l'effet en réactivité des 15 produits de fission absorbants, stables et non volatils retenus.

*C'est dans ce contexte et dans le cadre du projet SINET de simulation neutronique du CEA et du projet PRETING d'EDF-SINETICS dédié aux études associées à l'aval du cycle hors problématiques de stockage, que s'inscrivent ces travaux de recherche dont l'objectif est la définition d'une méthodologie CBU dédiée aux combustibles REP-MOx validée et physiquement représentative, permettant de prendre en compte les produits de fission. Cette méthodologie sera évaluée avec les codes de calculs et bibliothèques associées disponibles dans le but de démontrer son intérêt dans un cadre industriel et celui de l'apport des données de l'évaluation de données nucléaires JEFF-3.1.1.*

Pour répondre à cet objectif, ce document est organisé en six chapitres.

**Le premier** introduit tout d'abord les principales notions de neutronique liées à la thématique criticité utiles



à la compréhension des travaux propres au Crédit Burn-up ainsi que l'équation du transport neutronique, ses modes de résolution déterministe et probabiliste, et les équations de Bateman nécessaires au calcul du bilan matière des combustibles irradiés.

Les outils de calcul associés à l'évaluation de données nucléaires JEFF-3.1.1, co-développés et utilisés au CEA/SPRC pour les études de sûreté-criticité, sont ensuite présentés ainsi que les aspects validation et qualification expérimentale les concernant. L'état de l'art des méthodologies de prise en compte du CBU REP-MOx ainsi que l'identification des particularités liées à la difficulté du traitement du combustible MOx par rapport au combustible UOx fait l'objet du **Chapitre 3**. Les principaux axes de travail mis en évidence pour la définition d'une méthodologie CBU applicable aux combustibles REP-MOx y sont dégagés.

L'évaluation du Crédit Burn-up s'appuyant sur l'enchaînement d'un calcul d'évolution et d'un calcul de criticité, la détermination des biais de calcul liés à l'inventaire des isotopes pris en compte basée sur la qualification du formulaire d'évolution DARWIN-2.3 et la méthodologie associée à leur prise en compte dans la chaîne de calcul afin de garantir le conservatisme du bilan-matière seront tout d'abord exposés au **Chapitre 4**.

Le **Chapitre 5** traitera de l'évaluation des biais liés à l'antiréactivité des isotopes du CBU REP-MOx et en particulier des 15 produits de fission considérés. Leur estimation, ainsi que celle des pénalités associées qui peuvent être directement appliquées au  $k_{\text{eff}}$  de la configuration étudiée, repose sur la qualification de leur effet en réactivité et sont un point clé de la méthodologie. Grâce à la Méthode des Expériences Intégrales mettant en œuvre la théorie de la représentativité implantée dans l'outil RIB (Représentativité, Incertitude, Biais) qui seront ici présentés, les biais et incertitudes sur la réactivité dus aux données nucléaires pourront être transposés à des configurations d'intérêt après assimilation d'informations expérimentales issues des programmes d'oscillations CBU et MAESTRO réalisés dans le réacteur MINERVE et d'expériences critiques répertoriées dans le Handbook de l'International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project. La mise à jour des schémas de calcul pour la criticité au cours de l'interprétation fine des expériences d'oscillations de produits de fission séparés dans le réseau R1MOx de MINERVE, représentatif d'un réseau REP-MOx, fera l'objet d'une étude détaillée. Les tendances observées quant aux données nucléaires des isotopes oscillés seront identifiées et permettront de vérifier la pertinence de l'évaluation JEFF-3.1.1. L'utilisation de cette méthode requierant de disposer de matrices de variance-covariance, les travaux menés à l'aide du code de Re-estimation des Données Nucléaires RDN afin de déterminer des matrices de covariances réalistes associées à l'évaluation JEFF-3.1.1 pour les deux principaux produits de fission du CBU REP-MOx,  $^{149}\text{Sm}$  et  $^{103}\text{Rh}$  sur la base de l'interprétation des programmes d'oscillation CBU et MAESTRO seront discutés et utilisés dans le cadre d'une première étude de représentativité de leur empoisonnement dans le cas d'un assemblage grâce aux développements spécifiques réalisés dans RIB.

Enfin, le **Chapitre 6** détaillera l'application de la méthodologie ainsi développée à deux configurations industrielles, une piscine d'entreposage et un château de transport, en rappelant les hypothèses conservatives prises en compte et présentera les gains ainsi obtenus.

Nous concluerons alors sur les apports de la méthodologie en rappelant les principaux résultats obtenus et nous évoquerons les perspectives d'études complémentaires envisageables.

Les références bibliographiques se référant à un chapitre seront citées à la fin de celui-ci.

# Chapitre 1

## CONTEXTE PHYSIQUE DES ETUDES DE SURETE-CRITICITE

*Cette première partie présente les principales notions de neutronique liées à la thématique criticité utiles à la compréhension du travail propre au CBU, ainsi que le processus de production et de validation des données nucléaires dont la connaissance est indispensable à la réalisation de calculs de criticité. A la suite de ces rappels, l'équation du transport neutronique est introduite ainsi que ses deux modes de résolution, déterministe et probabiliste, ainsi que les équations de Bateman nécessaires au calcul amont de bilan-matière.*

### 1.1 Généralités sur les études de sûreté-criticité

Le risque de criticité est un risque spécifique aux installations nucléaires, dès lors que les quantités de matières fissiles (généralement uranium enrichi et plutonium) mises en œuvre sont supérieures à un certain seuil appelé « masse critique ». Ce seuil franchi, la réaction en chaîne de fission devient incontrôlable, la production de neutrons n'étant pas compensée par leur disparition. L'accident de criticité est donc lié à une question de bilan neutronique. Ce risque concerne l'ensemble des installations du cycle (enrichissement, fabrication du combustible, activités de retraitement, ...). Le but des études de sûreté-criticité est de prévenir ou de permettre l'arrêt de cette réaction en chaîne incontrôlée grâce à une analyse de sûreté-criticité prenant en compte aussi bien les situations de fonctionnement normal que dégradé de l'installation. Ainsi, des hypothèses enveloppes sont prises en compte pour évaluer la population neutronique. En France, la Règle Fondamentale de Sûreté (RFS) n° I.3.c a pour objet de préciser les dispositions prises afin d'éviter le risque d'accident de criticité dans les installations nucléaires de base autres que les réacteurs nucléaires et les mines. Elle se base sur le principe de double défaillance : « *un accident de criticité ne doit en aucun cas découler d'une seule anomalie : défaillance d'un composant, d'une fonction, erreur humaine (non-respect d'une consigne par exemple), situation accidentelle (incendie par exemple)* »... et « *si un accident de criticité peut découler de l'apparition simultanée de deux anomalies, il sera alors démontré que les deux anomalies sont rigoureusement indépendantes, que la probabilité d'occurrence de chacune des deux anomalies est suffisamment faible et que chaque anomalie est mise en évidence à l'aide de moyens de surveillance appropriés et fiables, dans un délai acceptable permettant l'intervention* ». La RFS préconise de plus de préciser, pour chaque unité de criticité (poste de travail...), le mode de contrôle de la criticité, le milieu fissile de référence et les dispositions relatives à chacun d'entre eux, en cohérence avec l'analyse des défaillances réalisée selon le principe de « double défaillance » précédemment évoqué.

Pour garantir la sûreté des installations vis-à-vis du risque de criticité, l'existence de marges de sécurité est essentielle [CRI-1]. L'analyse de sûreté doit donc définir les valeurs maximales admissibles pour chaque



paramètre, l'état critique constituant une limite qui ne doit jamais être atteinte. Certains milieux fissiles voyant leur «  $k_{\text{eff}}$  » varier très rapidement en fonction de certains paramètres, il est impossible de considérer simplement cette marge uniquement par une marge « administrative », prédéfinie, entre la valeur maximale du facteur de multiplication («  $k_{\text{eff}}$  ») de la configuration étudiée et la valeur  $k_{\text{eff}} = 1$ , correspondant à l'état critique. Ainsi, La RFS n'énonce donc pas de critère réglementaire chiffré quant à la marge de sécurité en terme de  $k_{\text{eff}}$  à respecter contrairement à l'approche américaine [CRI-1]. Le choix des marges de sécurité d'une configuration ou d'une situation données se base principalement sur :

- l'évaluation de la sensibilité du «  $k_{\text{eff}}$  » aux variations des différents paramètres contrôlés ;
- le degré de conservatisme lié à la modélisation lors du calcul (simplifications de géométrie, de composition, de réflecteur, de matériau modérateur) ;
- la probabilité du scénario correspondant à la situation enveloppe retenue pour les situations incidentelles ou accidentelles ;
- le degré de confiance dans les techniques de calcul utilisées (qualification par rapport à l'expérience du code de calcul).

La qualification des schémas de calcul utilisés, reposant sur la comparaison de résultats de calcul et des valeurs expérimentales, doit être particulièrement examinée lorsque la configuration étudiée possède un facteur de multiplication élevé. Les écarts obtenus font alors l'objet d'une interprétation pour identifier l'origine des biais observés (approximations, options de calculs, données nucléaires) puis les transposer aux configurations réelles à étudier. Pour cela, il est donc nécessaire d'évaluer la représentativité des expériences sélectionnées par rapport à la configuration étudiée [CRI-1]. Le biais alors déterminé dépend donc très fortement de la représentativité des ces expériences retenues et de leur qualité, sachant que les valeurs expérimentales sont entachées d'une incertitude. En s'appuyant sur l'état de qualification des formulaires de calcul utilisés, les critères d'admissibilité et les valeurs des paramètres de criticité doivent alors être fixés pour les configurations considérées en prenant éventuellement en compte des marges « forfaitaires » jugées suffisantes d'après l'avis d'experts [CRI-1].

## 1.2 Grandeurs neutroniques utiles

La criticité d'un système est évaluée par le **facteur de multiplication effectif**, noté  $k_{\text{eff}}$ , qui représente le nombre moyen de neutrons émis par fission auxquels donne naissance un neutron lui-même issu d'une fission. Il se traduit par le quotient du nombre de neutrons produits par fission et du nombre de neutrons disparaissant du système soit par fuites soit par absorption. En notant  $P$  le nombre de neutrons produits par fission,  $A$  le nombre de neutrons disparaissant par absorption,  $E$  le nombre de neutrons produits par excès lors des réactions ( $n$ ,  $xn$ ) et  $F$  le terme de fuite, il vient la définition suivante :

$$k_{\text{eff}} = \frac{P}{A - E + F} \quad (1.1)$$

D'après cette définition, l'augmentation de la population neutronique est régie par une suite géométrique de raison  $k_{\text{eff}}$ .

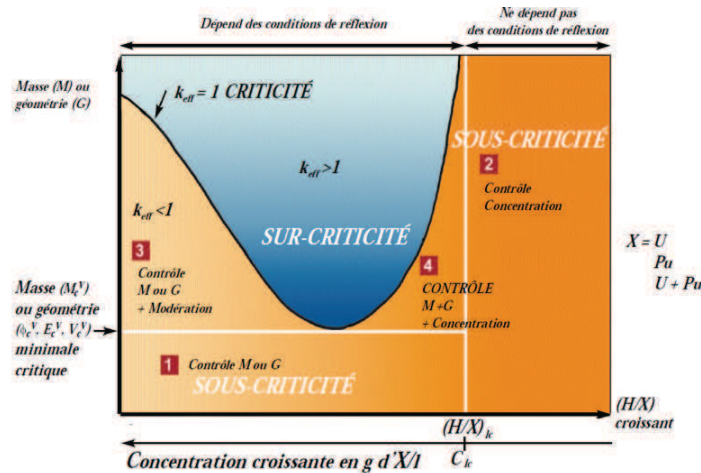
- si  $k_{\text{eff}} < 1$ , le nombre de neutrons diminue au cours de la réaction en chaîne : le système est dit « sous-critique » ;
- si  $k_{\text{eff}} = 1$ , la population neutronique est stable, le système est dit « critique » ;
- si  $k_{\text{eff}} > 1$ , la réaction en chaîne s'emballe, le système est dit « sur-critique ».

Plusieurs paramètres influent directement sur les différents termes du bilan neutronique [CRI-1] :

- terme de production : la production de neutrons est directement liée à la masse de matière fissile, à la modération, la plupart des réactions de fissions étant favorisées par tout processus pouvant ralentir les neutrons, mais aussi aux phénomènes de réflexion (une partie des neutrons quittant le milieu fis-

sile peut y revenir, après diffusion dans les matériaux environnants) et d'interaction avec les milieux contenus dans les équipements proches ;

- **terme d'absorption** : ajout de poisons neutroniques ;
- **terme de fuite** : la fuite des neutrons hors du milieu fissile est favorisée par une faible densité de celui-ci mais aussi par des dimensions du milieu faibles devant le **libre parcours moyen** des neutrons (valeur moyenne de la distance à laquelle se produit la première collision du neutron). La Figure 1.1 présente les différents moyens de contrôle de la criticité jouant sur ces paramètres.



**Figure 1.1 – Modes de contrôle de la criticité**

La réactivité traduit l'écart à la criticité d'un système. Elle s'exprime en pcm (pour cent mille) par :

$$\rho = \frac{k_{\text{eff}} - 1}{k_{\text{eff}}} \quad (1.2)$$

Les variables utilisées pour décrire la population neutronique sont :

- l'espace  $\vec{r}$  (trois variables) ;
- la vitesse, souvent remplacée par l'énergie cinétique  $E$  ou la léthargie  $u$ , définie comme le logarithme népérien du rapport d'une énergie de référence  $E_0$  à l'énergie  $E$  (une variable) :

$$u = \ln \frac{E_0}{E}$$

- la direction  $\vec{\Omega}$  (deux variables car on considère un vecteur normé) ;
- le temps  $t$  (une variable).

A l'instant  $t$ , le nombre moyen de neutrons situés dans un volume élémentaire  $d^3r$  autour du point  $r$ , ayant une énergie comprise entre  $E$  et  $E+dE$  et une direction située dans l'angle solide élémentaire  $d^2\Omega$  autour de  $\vec{\Omega}$  est :

$$n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) d^3 r dE d^2 \Omega$$

avec  $n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  la **densité neutronique en phase**.

Exprimé à partir de la **densité neutronique en phase**, le **flux neutronique**  $\Phi$  est la grandeur la plus fréquemment usitée :

$$\Phi(\vec{r}, E, t) = \int_{4\pi} v n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) d^2\vec{\Omega}$$

avec  $\nu$  la multiplicité des neutrons de fission et  $4\pi$  la mesure de la sphère unité des directions  $\vec{\Omega}$ .

Le **taux de réaction** exprime le nombre de réactions d'un type donné par unité de temps, de volume, de vitesse et d'angle solide. Pour une densité en phase de neutrons  $n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$ , le taux de réaction est donné par :

$$T_\rho(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \nu \Sigma_\rho(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \Sigma_\rho(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$$

$$T_\rho(\vec{r}, E, t) = \int_{4\pi} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \Sigma_\rho(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) d^2\vec{\Omega}$$

Le facteur de proportionnalité  $\Sigma_\rho$ , dépendant de la position et de la vitesse des neutrons, a la dimension d'une surface et traduit la probabilité d'une interaction de type  $p$  de chacun de ces neutrons avec la matière : cette grandeur est appelée **section efficace macroscopique**.

### 1.2.1 Notion de section efficace

Proportionnelle au parcours effectué dans la matière, la probabilité d'interaction d'une particule avec celle-ci introduit la notion de section efficace. Celle-ci peut être macroscopique, caractérisant un matériau dans son ensemble contenant un nombre important de cibles potentielles pour la particule en mouvement, ou microscopique, caractéristique d'une seule de ces cibles en particulier. Une interaction entre la cible et la particule en mouvement ne peut avoir lieu uniquement si le centre de cette dernière s'approche à une distance inférieure à la somme de son rayon et de celui du noyau cible. L'aire  $\sigma$  du cercle de rayon  $R_{particule} + R_{cible}$  représente la section efficace [CRI-2].

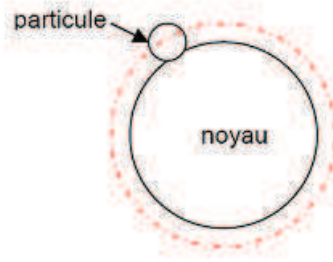


Figure 1.2 – Représentation de la notion de section efficace

Une probabilité d'interaction est liée à cette aire car si on considère à présent plusieurs cibles contenues dans une surface d'aire  $S$ , la probabilité que la particule en mouvement entre en collision avec l'une de ces cibles est égale au rapport de la surface totale des cibles et de la surface les contenant soit  $N\sigma/S$  avec  $N$  nombre de noyaux cibles et  $\sigma$  la section efficace microscopique. Suivant la nature des interactions entre particules et matière cible, il existe plusieurs types de sections efficaces dites partielles caractérisant chacun de ces processus d'interaction dont la somme est la section efficace totale. On distingue dans cette section totale les processus de diffusion (un neutron est réémis après la réaction) et ceux d'absorption (non réémission de la particule après choc) :

$$\sigma_{totale}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \sigma_{diffusion}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) + \sigma_{fission}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) + \sigma_{capture}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \quad (1.3)$$

sachant que l'on nomme  $\sigma_{absorption}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \sigma_{fission}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) + \sigma_{capture}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$

Par définition, en notant  $r$  le type de réaction, le ratio

$$\frac{\sigma_r}{\sigma_{totale}}$$

est la probabilité que l'interaction particule-matière, si elle a lieu, se produise selon le processus  $r$ .

### 1.2.1.1 Section efficace macroscopique

Pour définir la section efficace macroscopique, intéressons-nous à l'atténuation d'un flux de particules d'intensité  $I$  particules par  $cm^2$  dans un matériau cible de densité volumique  $N$  atomes par  $cm^3$  d'épaisseur élémentaire  $dx$ . Lorsque le flux de particules parcourt l'épaisseur élémentaire  $dx$ , son intensité diminue et s'exprime  $-dI(x) = I(x)N\sigma(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)dx$ ,  $I(x)N\sigma(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)dx$  étant le nombre d'interactions ayant eu lieu dans l'épaisseur  $dx$ . En fonction de l'épaisseur du matériau cible traversée, l'intensité du faisceau de particules incidentes s'écrit donc  $I(x) = I_0 e^{-N\sigma x}$ . Le produit  $N\sigma(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  est appelé section efficace macroscopique et noté  $\Sigma(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  et traduit le fait que la probabilité d'interaction d'une particule avec un matériau est proportionnelle à la densité de celui-ci. Elle est donc exprimée en  $cm^{-1}$ . Dans le cas des neutrons, pour les matériaux classiquement rencontrés, les sections efficaces macroscopiques sont de l'ordre du  $cm^{-1}$  [CRI-2].

### 1.2.1.2 Section efficace microscopique

Une section efficace microscopique est assimilable à la section droite d'un noyau cible et est égale à  $\pi(R_{particule} + R_{cible})^2$  comme vu précédemment dans la définition intuitive de la condition d'interaction. Précisons qu'en vertu du caractère ondulatoire de la particule incidente, cette distance  $R_{particule} + R_{cible}$  n'est pas une simple distance géométrique. En effet, les sections efficaces microscopiques sont très dépendantes de l'énergie de la particule incidente et sont très différentes même si on considère deux noyaux très proches (Figure 1.3) [CRI-3].

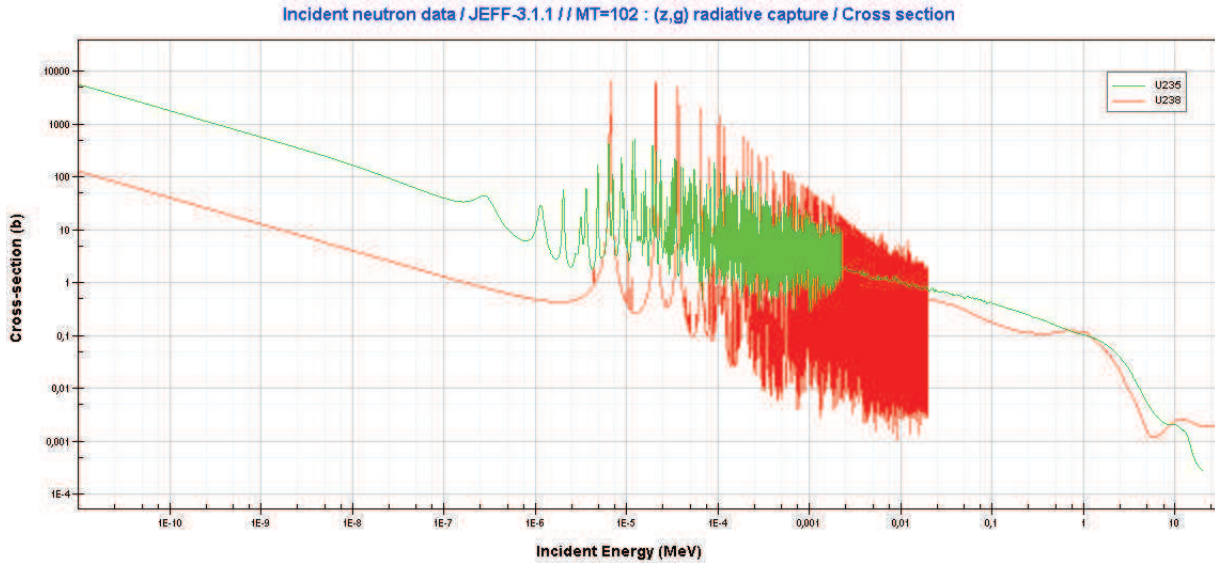


Figure 1.3 – Comparaison des sections efficaces microscopiques de capture de l' $^{235}\text{U}$  et de l' $^{238}\text{U}$

L'unité usuelle de ces sections est le barn (b) défini tel que  $1 \text{ barn} = 10^{-24} cm^2$ . Le Tableau 1.1 fournit quelques exemples de sections efficaces microscopiques au point thermique ( $2200 \text{ m.s}^{-1}$ ) pour des isotopes intéressant les problématiques de criticité.

	section efficace en barn ( $2200 \text{ m.s}^{-1}$ ) JEFF-3.1.1		
Isotope	fission	capture	diffusion
$^{235}\text{U}$	585	99	15
$^{239}\text{Pu}$	747	273	11
$^{241}\text{Pu}$	1012	363	11
$^{240}\text{Pu}$	0.06	285	3
$^{241}\text{Am}$	3.2	65	12
$^{155}\text{Gd}$	/	60743	59
$^{149}\text{Sm}$	/	41731	205
$^{103}\text{Rh}$	/	143	4
$^1\text{H}$	/	0.3	30
$^{56}\text{Fe}$	/	2.5	12.2
$^{90}\text{Zr}$	/	0.01	5.4

**Tableau 1.1 – Exemples de sections efficaces microscopiques pour des isotopes intéressant les problématiques de criticité**

Concernant cette évolution des sections efficaces en fonction de l'énergie, on peut distinguer quatre principaux domaines énergétiques observés dans le sens des énergies croissantes :

- le domaine thermique ;
- le domaine des résonances résolues en énergie où les résonances sont décrites individuellement ;
- le domaine des résonances non-résolues où les résonances existent mais ne peuvent être mesurées ;
- le domaine statistique ou du continuum où les fluctuations des résonances sont lissées, car la largeur des niveaux est désormais supérieure à leur espacement.

A chacun de ces domaines correspond un formalisme théorique adapté. Notons que les sections efficaces (microscopiques et macroscopiques) sont usuellement tabulées en fonction de l'énergie (particulièrement dans le domaine non-résolu et le continuum).

### 1.2.1.3 Calcul de sections efficaces

Il existe différents modèles de description des réactions nucléaires dont :

- le modèle du noyau-composé lorsque le neutron incident est absorbé par le noyau cible (modèle essentiellement utilisé jusqu'à quelques MeV) ;
- le modèle du potentiel optique lorsque le neutron diffuse sur des états discrets du noyau-cible ;
- le modèle de pré-équilibre entre ces deux cas lorsque l'énergie du neutron incident est inférieure à 200 MeV.

Le calcul des sections efficaces nécessite d'enchaîner ces trois modèles afin de traiter de manière cohérente l'ensemble des voies ouvertes, une voie caractérisant le système avant et après réaction (Figure 1.4). On utilise d'abord le modèle du potentiel optique qui permet de séparer les composantes de réactions directes par opposition aux processus où la particule incidente est absorbée par la cible (section efficace de réaction). Le potentiel optique fournit en outre des coefficients de transmission au modèle du noyau composé. La section efficace de réaction est ensuite traitée par le modèle de pré-équilibre qui opère une deuxième séparation en décrivant les émissions rapides ayant lieu avant que le système n'atteigne une situation d'équilibre. Finalement, une fraction de la section efficace de réaction permet de former un noyau composé dont la décroissance (par fission, par émission gamma ou émission neutron) va être décrite par le modèle du même nom.

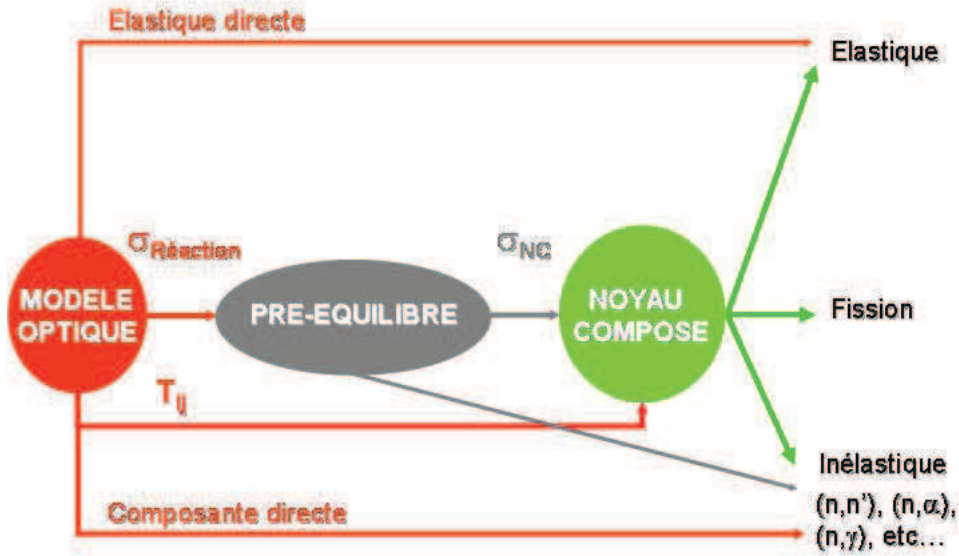


Figure 1.4 – Enchaînement des modèles de traitement des sections efficaces

De nombreux formalismes, basés sur la mécanique quantique, existent pour décrire la forme des sections efficaces suivant l'énergie de la particule incidente. Tous ces formalismes se basent sur la compréhension de la désexcitation de ce noyau composé ou intermédiaire. Ils sont issus de la simplification du modèle de R-matrice [CRI-4] de Kapur-Pierls. Parmi eux citons ceux de Reich et Moore (modèle le plus précis à ce jour négligeant l'interférence entre les voies gamma de différents niveaux), de Adler et Adler, de Blatt-Biedenhorn, de Wigner-Eisenbund (modèle de matrice de transfert) et celui de Breit-Wigner (à un ou plusieurs niveaux), probablement le plus connu. Dans la plupart des cas industriels, le formalisme de Breit-Wigner (1936) est largement suffisant pour décrire la forme des sections efficaces [CRI-2]. C'est donc lui que nous allons développer ici. Le formalisme de Breit-Wigner multi-niveaux prend en compte l'interférence entre les voies mais pas entre les niveaux tandis que le formalisme simple niveau est valable lorsque l'on peut négliger les interférences entre les niveaux et résonances. C'est ce dernier que nous allons à présent développer.

Les formules des sections efficaces partielles de Breit-Wigner sont données pour une résonance supposée isolée et caractérisée par deux paramètres dits de résonance :  $E_0$ , l'énergie du pic de résonance et  $\Gamma_i$ , les largeurs partielles de résonance,  $i$  correspondant aux différents modes de désexcitation du noyau composé formé lors de l'interaction résonnante entre particule en mouvement et noyau cible [CRI-2]. Elles expriment la variation d'une section efficace au voisinage d'une résonance. Les notations utilisées sont les suivantes :

- $E$  : énergie cinétique du neutron dans le système du centre de masse
- $\mu$  : masse réduite du noyau composé
- $g$  : facteur statistique lié à l'existence du spin

$$g = \frac{2J + 1}{(2s + 1)(2I + 1)} \quad (1.4)$$

- $\lambda$  : longueur d'onde réduite  $\lambda = h / \sqrt{2\mu E}$

- $E_0$  : énergie du pic de résonance
- $\Gamma$  : largeur de la résonance (dimension d'une énergie)  $\Gamma = h/\tau$  avec  $\tau$  durée de vie moyenne du noyau composé



- $\Gamma_n$  : largeur partielle de résonance correspondant à une désexcitation par émission d'un neutron
- $\sigma_p$  : section de diffusion potentielle (peut être considérée comme constante sur l'intervalle d'énergie couvert par la résonance).

Les sections d'absorption et de diffusion s'expriment selon :

- sections efficaces d'absorption (capture et fission)

$$\sigma_i = \pi \lambda^2 g \frac{\Gamma_n \Gamma_i}{(E - E_0)^2 + \Gamma^2/4}$$

avec  $i = c$  ou  $f$ .

- sections efficaces de diffusion

$$\sigma_s = \sigma_p + \pi \lambda^2 g \frac{\Gamma_n^2}{(E - E_0)^2 + \Gamma^2/4} + 2 \sqrt{\pi \lambda^2 g \sigma_p} \frac{\Gamma_n (E - E_0)}{(E - E_0)^2 + \Gamma^2/4}$$

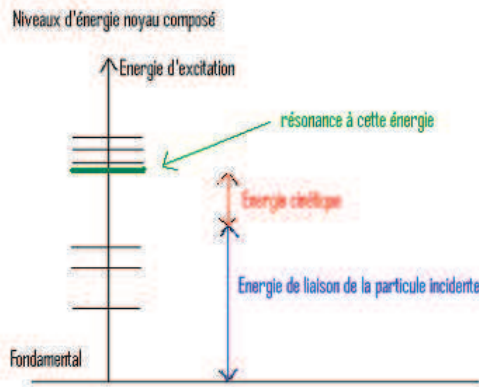
En réalité, du fait de l'existence de plusieurs résonances, ces expressions doivent être additionnées pour chacune d'entre elles. Notons que dans le domaine des résonances non résolues, une description statistique du modèle du noyau composé à l'aide du formalisme généralisé de Hauser-Feshbach, dérivé lui aussi de la théorie de la matrice R est particulièrement bien adaptée.

### 1.2.2 Notion de résonance

Une interaction entre une particule en mouvement (neutron dans le cas nous intéressant) et un noyau cible peut être de deux types :

- Potentielle lors de laquelle le neutron est seulement dévié par le noyau-cible, possible quelle que soit l'énergie de la particule incidente ;
- Résonante donnant lieu à la formation d'un noyau composé par absorption du neutron incident par le noyau cible. Le noyau composé ainsi formé se trouve dans un état très excité car en plus de sa propre énergie cinétique, il a acquis l'énergie de liaison de la particule incidente. Pour se désexciter, il peut :
  - émettre un neutron suivant deux modes différents :
    - le noyau résiduel est laissé dans son état fondamental, c'est la diffusion élastique notée  $(n, n)$  ;
    - le noyau résiduel retourne à son état fondamental après émission d'un rayonnement gamma, c'est la diffusion inélastique notée  $(n, n')$  ;
  - émettre un ou plusieurs rayonnements gamma, c'est la capture radiative notée  $(n, \gamma)$  ;
  - se séparer en deux voire trois fragments, c'est la fission binaire ou ternaire  $(n, f)$  ;
  - émettre plusieurs neutrons, il s'agit d'une réaction  $(n, xn)$  avec  $x$  variant de 2 à 4 ;
  - émettre des particules chargées :  $\alpha$ , protons, deutons, tritons, ce sont les réactions notées respectivement  $(n, \alpha)$ ,  $(n, p)$ ,  $(n, d)$ ,  $(n, t)$ .

Certaines de ces réactions n'ont lieu que lorsque le neutron incident possède une énergie minimale, on parle de réactions à seuil. Si l'énergie de liaison de la particule amène l'énergie d'excitation sur l'un des niveaux du noyau composé ou à proximité, l'interaction sera facile et donc la section efficace grande, d'où l'observation d'un pic appelé « résonance » (Figure 1.5).



**Figure 1.5 – Origine des résonances**

Ces pics de résonance correspondent donc aux états excités du noyau composé et les creux à une interférence entre l'amplitude résonnante et une amplitude non-résonnante [CRI-4]. A l'échelle nucléaire, la durée de vie du noyau composé est longue. L'énergie d'excitation a donc le temps de se répartir et le noyau composé n'a plus la mémoire de ce qui a provoqué son excitation. C'est donc cette structure en niveaux d'énergie qui gouverne l'interaction et donc les sections efficaces [CRI-5]. En fonction de l'énergie cinétique de la particule incidente, donc de l'énergie d'excitation du noyau composé, il existe différents domaines dans lesquels il est de moins en moins aisé de discriminer les différentes résonances : le domaine résolu, le domaine statistique (impossibilité de discrimination par les mesures) et le domaine du continuum (recouvrement des résonances entre elles). Tous les isotopes ne présentent pas des résonances. On n'en observe pas ou peu pour des noyaux légers. Par contre, pour les noyaux lourds et en particulier les actinides, de nombreux pics sont observés car leur densité de niveaux d'excitation est plus élevée [CRI-2]. De plus, on constate que pour les noyaux dont le nombre de neutrons est impair, le nombre de résonances est plus important [CRI-2]. En effet, l'énergie de liaison du neutron incident est plus grande lorsque le noyau cible est impair puisqu'une paire peut ainsi se former.

#### *Interférence des résonances*

Pour améliorer la précision des calculs sans que ceux-ci ne deviennent trop coûteux, trois voies sont identifiées :

- la tabulation des mélanges pour des matériaux résonnants dont la composition varie faiblement en cours d'irradiation (le Hafnium naturel par exemple) ;
- les tables de probabilité (privilégiées pour le domaine des hautes énergies), méthode fondée sur une tabulation préliminaire et définitive, complémentaire de la méthode des taux de réaction effectifs (faibles énergies) ;
- la prise en considération simplifiée des interférences grâce à des coefficients habilement choisis ;
- l'utilisation d'un maillage fin (comme dans SHEM [CRI-6] au dessous de 23 eV).

### **1.2.3 Effet Doppler**

Si dans le cas d'une simple diffusion du neutron sur un noyau on peut négliger l'agitation thermique des noyaux cibles, ce n'est pas le cas lors d'une absorption. La prise en compte de la vitesse du noyau-cible, oscillant autour d'une position d'équilibre, modifie la vitesse relative du neutron par rapport



à celui-ci. Or, la section efficace est fonction de cette vitesse relative, ou vitesse dans le centre de masse, elle est donc elle aussi impactée. Pour une section efficace variant lentement, l'impact est minime mais au voisinage d'une résonance, même une très faible modification de cette vitesse peut avoir un impact non négligeable sur la section efficace. Cette agitation thermique, approximée par un spectre de Maxwell, doit donc être prise en compte dans les calculs d'intégrale effective qui doit être tabulée en fonction de la section de dilution mais aussi de la température. L'effet Doppler conduit à un abaissement du pic de résonance qui s'élargit, engendrant une augmentation de l'absorption résonnante donc une diminution du facteur de multiplication effectif [CRI-2] (Figure 1.6).

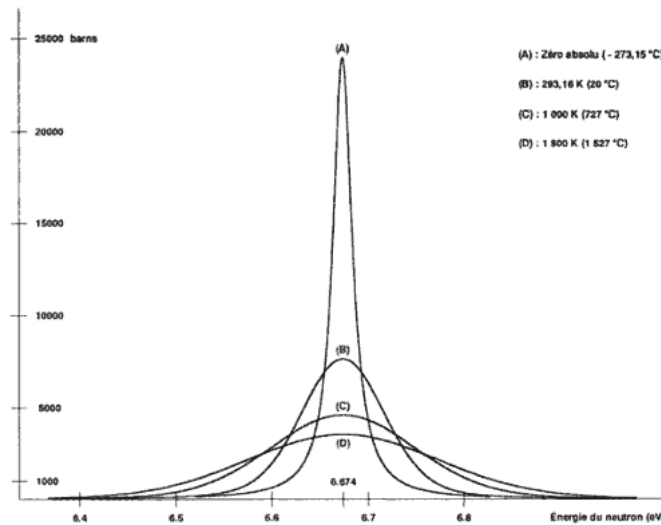


Figure 1.6 – Influence de l'effet Doppler sur la grande résonance de l' $^{238}\text{U}$

#### 1.2.4 Notion d'autoprotection

Si, en se ralentissant, un neutron arrive dans le combustible avec une énergie égale à celle de l'un des pics de résonance, il peut disparaître sans avoir pu provoquer de fission. De ce fait, si une grande quantité de neutrons subit ce sort, la réaction en chaîne devient impossible. Le phénomène d'autoprotection permet l'entretien de la réaction en chaîne en évitant la perte par capture d'un trop grand nombre de neutrons dans les résonances et intervient lorsque la section efficace macroscopique d'absorption devient grande et dans la zone contenant le matériau résonnant : le combustible. Deux raisons permettent de limiter la disparition des neutrons par capture résonnante en dépit des fortes valeurs de section efficace au niveau des résonances :

- l'hétérogénéité de la structure du réacteur. Après une fission, les neutrons produits quittent en général la zone combustible pour entrer dans le modérateur dont le volume est nettement plus important et où ils peuvent se ralentir sans risque d'être capturés stérilement.
- l'élargissement des pics de résonance. Si durant son ralentissement, un neutron atteint une énergie proche de celle d'une résonance, il va pouvoir éviter celle-ci en perdant une quantité suffisante d'énergie au cours de son dernier choc avec un noyau de modérateur juste avant de rentrer dans le combustible. En effet, si le « saut énergétique » effectué par le neutron est plus large que le pic de résonance (trappe), la hauteur de celui-ci n'a pas d'importance [CRI-2] (Figure 1.7).

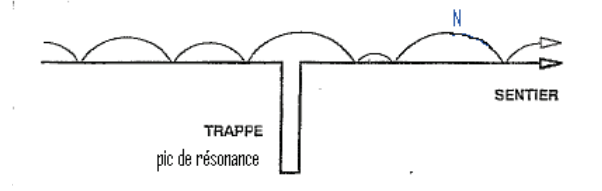


Figure 1.7 – Neutron se ralentissant sans disparaître dans une résonance

Techniquement, le taux d'absorption des neutrons défini par le produit  $\tau_a = \Sigma_a \phi$  reste fini. Lorsque la section efficace  $\Sigma_a$  augmente, le flux  $\phi$  diminue de manière presque proportionnelle comme le montre la Figure 1.8 [CRI-2] :

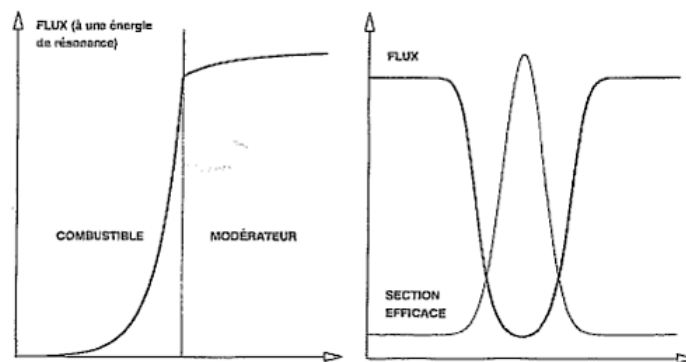


Figure 1.8 – Phénomène d'autoprotection par rapport à l'énergie et par rapport à l'espace

### 1.3 Données nucléaires

Les études de sûreté-criticité portant sur les diverses étapes du cycle du combustible, elles nécessitent la connaissance de données nucléaires précises sur de nombreux noyaux (fissiles, absorbants neutroniques, modérateurs, réflecteurs) et ce sur tout le spectre neutronique. La connaissance des données nucléaires est essentielle pour le développement et la mise en œuvre des sciences et techniques nucléaires. Ce sont en effet elles qui constituent les bibliothèques alimentant les codes de simulation neutronique. Issues de mesures ou de calculs, les données nucléaires de base font l'objet d'un vaste travail d'évaluation, de correction et d'analyse avant d'être disponibles pour une quelconque application. Pour qu'elles puissent être directement utilisables, elles ont à subir les étapes suivantes (Figure 1.9) :

- mesures ;
- évaluation (création d'évaluations à partir de mesures et de modèles théoriques) ;
- traitement (création des bibliothèques applicatives) ;
- validation/qualification par rapport à des résultats de benchmarks ou d'essais intégraux réalisés sur maquettes critiques (MINERVE, EOLE, MASURCA, ...) ou en réacteur de puissance.

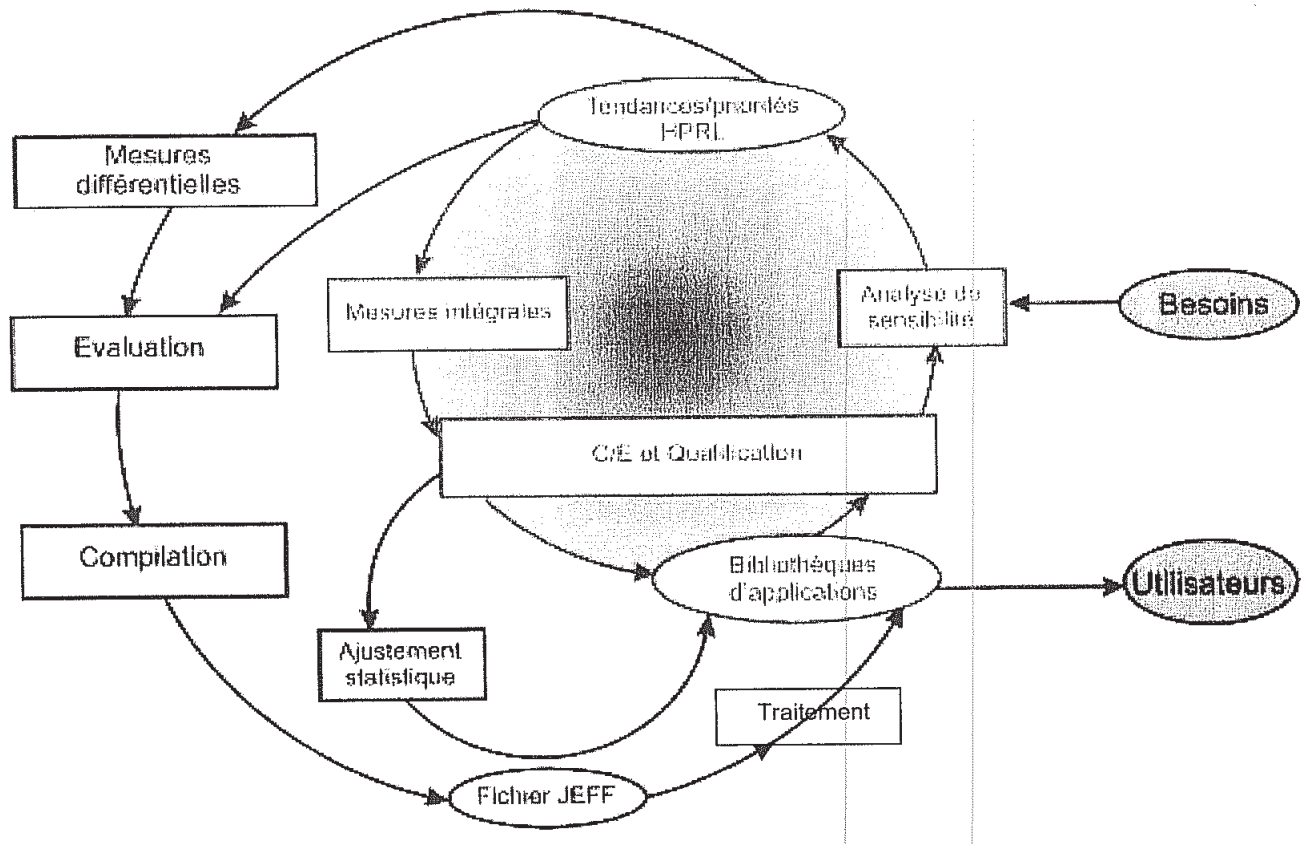


Figure 1.9 – Processus de production et de validation des données nucléaires

#### 1.3.1 Mesures de données neutroniques de base

Les données nucléaires de base sont accessibles, en fonction des noyaux étudiés, des énergies et du type de réaction considérés soit par des mesures intégrales ou différentielles soit en appliquant un modèle, sachant que l'approche la plus précise est celle obtenue par conjonction d'une expérience et

d'un calcul. Dans le domaine résonnant, pour les réactions induites par des neutrons, les évaluations s'appuient sur les mesures car, bien que la théorie du noyau composé soit rigoureuse, elle ne peut prédire la largeur et l'énergie des résonances hormis de manière probabiliste [CRI-7].

### 1.3.1.1 Mesures différentielles de section efficace

Les expériences différentielles sont réalisées grâce à des accélérateurs de particules. Ceux-ci produisent des neutrons selon une réaction choisie. Par la méthode du temps de vol, pour un faisceau pulsé de particules, on peut déterminer l'énergie des neutrons émis. Les sections efficaces en fonction de l'énergie cinétique du neutron sont dites différentielles en énergie [CRI-8].

- Section efficace totale : la seule à pouvoir être mesurée en absolu car elle n'est pas relative à une section efficace standard « étalon ». Cette mesure s'effectue grâce à la méthode dite de transmission. Un faisceau de neutrons est transmis à travers un échantillon de matière dont l'épaisseur  $e$  a été fixée et contenant  $N$  atomes par unité de volume. Un détecteur de neutrons est placé dans le faisceau. Une mesure est réalisée avec échantillon et une sans échantillon. Le rapport de ces deux signaux expérimentaux est le coefficient de transmission  $\exp(-eN\sigma)$  d'où l'obtention de  $\sigma$ , connaissant  $e$  et  $N$ .
- Sections efficaces partielles (diffusion, fission, capture) : détection des produits de réaction (neutrons, photons  $\gamma$ ,...). Ces mesures sont relatives à une section efficace standard qui doit être mesurée pour permettre une normalisation des résultats obtenus. De plus, la forme du flux de neutrons doit être déterminée.

Notons que les signaux des détecteurs doivent être corrigés (bruit de fond, temps morts...) et normalisés avant d'obtenir des sections efficaces [CRI-8].

### 1.3.1.2 Mesures intégrales de section efficace

Les expériences de type intégrales sont réalisées soit dans des réacteurs de puissance ou des réacteurs expérimentaux (maquettes critiques au comportement représentatif d'un réacteur de puissance de type EOLE, MINERVE, MASURCA, DIMPLE,...). Elles sont appelées ainsi car elles concernent des grandeurs exprimées mathématiquement par des intégrales de sections efficaces (taux de réaction, facteur de multiplication...). Il en existe deux principaux types [CRI-9] :

- les mesures de type fondamental visant à qualifier les données nucléaires de base ;
- les mesures de type maquette visant à qualifier les méthodes de calcul à travers des paramètres de projet.

Grâce à des chambres à fission ou à des mesures de radioactivité  $\alpha$ ,  $\beta$  ou  $\gamma$  après irradiation, ce type de mesure permet de remonter aux taux de réaction qui correspondent à l'intégrale des sections efficaces multipliée par le flux sur le spectre neutronique du réacteur. Sa précision est donc limitée essentiellement par la connaissance du flux neutronique. La conception d'expériences de type intégral consiste en l'utilisation d'enchaînement de modèles de calculs de sensibilité et de calculs d'incertitudes et permet de vérifier a priori l'adéquation de l'expérience au besoin de qualification. Leur intérêt réside particulièrement dans le fait qu'elles portent sur des paramètres physiques ayant un intérêt immédiat pour l'ingénieur (porter un jugement sur la qualité d'un calcul) et qu'elles sont généralement très précises. Les données issues de ces expériences servent à la validation des données en permettant la comparaison avec les résultats de simulation (reconstruction de données à partir des mesures différentielles ou calcul par modèle). Elles sont en particulier utilisées pour obtenir des tendances et ré-estimer les données nucléaires [CRI-10].

Les mesures intégrales et différentielles sont donc complémentaires [CRI-11] car :

- il faut connaître le spectre neutronique et utiliser des données ponctuelles pour le simuler ;
- sur un spectre représentatif de l'application considérée, les mesures intégrales permettent la mesure précise d'un taux de réaction alors qu'une mesure différentielle donne une valeur ponctuelle de section efficace à une énergie donnée.

C'est ce qu'illustre la Figure 1.10.

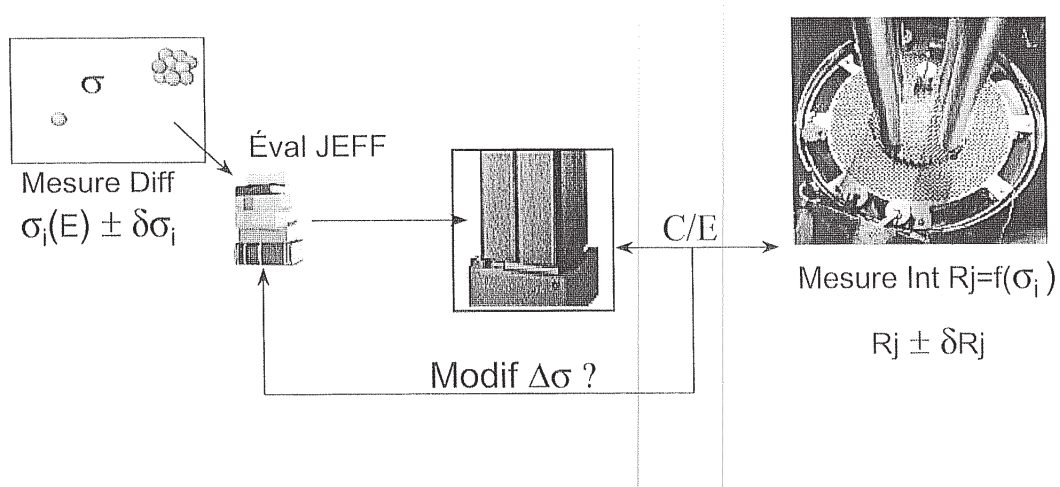


Figure 1.10 – Complémentarité des expériences différentielles et intégrales

### 1.3.2 Evaluation des données nucléaires

L'ensemble des mesures effectuées jusqu'à présent sur les différents nucléides pour différentes énergies de neutrons incidents et différentes réactions constitue une importante base de données. Ajustées et complétées par des modèles théoriques adaptés aux différents domaines d'énergie, les mesures de données nucléaires sont regroupées dans la base internationale EXFOR. Compte-tenu de la nécessité de choisir entre des valeurs redondantes et de combler les lacunes, il est apparu opportun de standardiser le mode de présentation et les procédures d'exploitation de ces informations (format unique ENDF, Evaluated Nuclear Data File). Dans ces fichiers ENDF contenant plutôt des paramètres permettant le calcul des données nucléaires que des données nucléaires proprement dites, les données sont organisées en donnant pour chaque isotope et type de données (section efficace, production de gammas, distribution angulaire des neutrons après réaction, incertitudes, . . . ) les informations relatives à chaque réaction considérée. Cette tâche est dévolue à des organismes dits d' « évaluation ». Les principales évaluations de données nucléaires utilisées à l'heure actuelle dans le monde sont [CRI-2] :

- ENDF/B-VII, Evaluated Nuclear Data File, USA
- JEFF-3.1.1 [CRI-3], Joint Evaluated Fission and Fusion, Europe (agence de l'énergie nucléaire de l'OCDE)
- JENDL4 [CRI-12], Japanese Evaluated Nuclear Data Library , Japon
- UKNDL, UK Nuclear Data Library, Royaume-Uni
- CENDL3, Chinese Evaluated Nuclear Data Library, Chine
- FENDL2, Fusion Evaluated Nuclear Data Library, AIEA
- TENDL, Talys based Evaluated Nuclear Data Library, Europe
- KEDAK, Kerndaten Karlsruhe, Allemagne
- BROND 2.2, Russie
- RUSFOND, RUSSian File of Evaluated Neutron Data, Russie
- EAF-2010, European Activation File, Europe
- IRDF-2002, International Reactor Dosimetry File, AIEA

Ces évaluations contiennent les paramètres relatifs aux principales constantes nucléaires de base (masses, énergies d'excitation isomérique, périodes de décroissance, spin et parité, intensités d'émission), les rendements indépendants et cumulés de fission et les sections efficaces utiles aux différentes applications : fission, fusion, radioprotection et sont les sources des bibliothèques de données nucléaires utilisées par les différents formulaires neutroniques utilisés en physique des réacteurs. En effet, compte tenu de leur nature, les données présentes dans les évaluations doivent subir un traitement physique, numérique et informatique avant de pouvoir être utilisées par les codes de calcul neutronique [CRI-13].

#### 1.3.2.1 CONRAD

CONRAD (COde for Nuclear reaction Analysis and Data Assimilation) [CRI-14] est un code d'évaluation développé au CEA/SPRC dans le but de :

- analyser et évaluer des sections efficaces totales et partielles dans les domaines des résonances résolues, non-résolues et du continuum ;
- estimer des paramètres de modèles de réactions nucléaires grâce aux résultats fournis par les expériences différentielles et intégrales ;
- évaluer et propager des incertitudes (statistiques et systématiques) sur ces données et produire les matrices de variance-covariance.

Il permet donc l'évaluation proprement dite des données nucléaires (estimation de paramètres d'un modèle nucléaire sur des données expérimentales) mais aussi d'améliorer la connaissance de celles-

ci par l'utilisation de modèles de plus en plus précis (modélisation des sections efficaces jusqu'à 20 MeV). Il s'agit d'une bibliothèque informatique développée en C++ permettant à chaque utilisateur de construire son propre exécutable en fonction des étapes qu'il juge nécessaires pour son analyse. CONRAD s'organise en différents modules, comme le montre la Figure 1.11, correspondant à ces différentes activités :

- modules théoriques (calculs de sections, de transmissions, de rendements...);
- modules expérimentaux (corrections expérimentales, réduction de données,...);
- modules d'analyse (minimisation, marginalisation, analyse statistique,...);
- modules d'interface (mise au format ENDF, EXFOR,...).

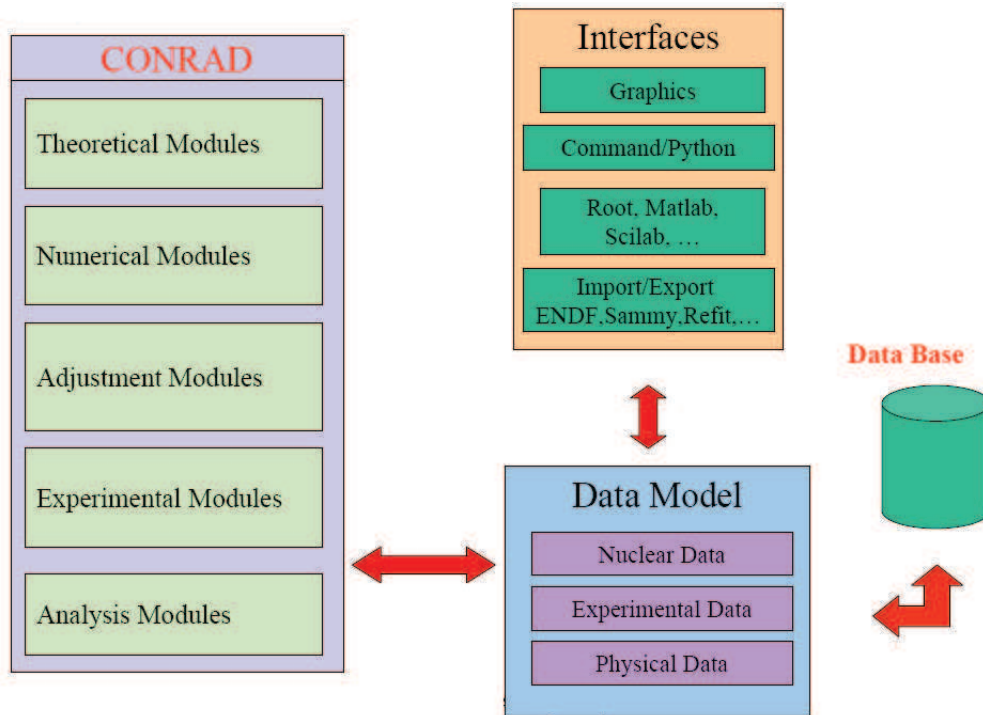


Figure 1.11 – Structure du code d'évaluation des données nucléaires CONRAD

Le code REFIT [CRI-15] permet l'extraction des paramètres de résonance par la méthode des moindres carrés à partir des valeurs expérimentales du taux de capture et/ou de la transmission neutronique. Comme nous l'avons évoqué au paragraphe 2.2.1.3, le calcul des sections efficaces nécessite d'enchaîner ces trois modèles afin de traiter de manière cohérente l'ensemble des voies ouvertes. Les modèles implémentés dans CONRAD pour décrire les réactions nucléaires sont les suivants [CRI-14] :

- domaine des résonances résolues : modèles dérivés du formalisme de la matrice R (Reich-Moore, Breit-Wigner Multi Niveaux, ...);
- domaine des résonances non résolues : formalisme de la matrice R [CRI-16];
- domaine statistique : modèles de Hauser-Feshbach, Moldauer, GOE, ...;
- domaine du continuum : modèle optique (enchaînement automatique de calculs ECIS [CRI-17] et TALYS [CRI-18]).

Pour qu'une mesure associée à une expérience puisse être correctement simulée en tenant compte des conditions expérimentales de sa réalisation (température, description de la cible, ...), les modules suivants ont également été implémentés dans CONRAD :

- calculs d'élargissement Doppler;



- effet de la résolution du dispositif expérimental (plus petite variation de la grandeur à mesurer que l'appareil est capable de détecter) ;
- effet de la diffusion multiple pour les cibles épaisses.

#### 1.3.2.1.1 Propagation des incertitudes au cours de l'évaluation des données

Les incertitudes sur les grandeurs expérimentales sont à l'origine des incertitudes sur les sections efficaces. CONRAD propose plusieurs techniques de propagation des incertitudes pour chaque étape de l'évaluation des sections efficaces [CRI-19] : d'une part pour propager celles des données expérimentales et ensuite pour obtenir celles des paramètres de modèles nucléaires utilisés dans un ajustement, ajustement basé sur la minimisation d'une fonction de coût (fonction des moindres carrés généralisée) prenant en compte un jeu de paramètres expérimentaux et les informations « a priori » sur ces paramètres :

- création de matrices de covariance expérimentale ;
- méthode rétroactive permettant de générer des matrices de variance-covariance pour des paramètres de résonance déjà évalués en prenant en compte toutes les sources expérimentales de ces incertitudes (absence d'incertitudes « a priori ») ;
- marginalisation analytique/Monte-Carlo des paramètres de nuisance :

Les paramètres des modèles décrivant les réactions nucléaires par lesquels sont définies les sections efficaces et servant à l'évaluation des matrices de variance-covariance ne peuvent pas toujours être prédits par la théorie. Des valeurs expérimentales sont utilisées pour l'évaluation. Or, les conditions expérimentales (composition et température de l'échantillon utilisé, facteur de normalisation, correction du bruit de fond, ...) de la mesure sont sources d'incertitudes. Ces paramètres appelés « paramètres de nuisance », jouent un rôle majeur dans la propagation des incertitudes sur les données nucléaires. Pour traiter l'influence de ces paramètres pendant l'estimation des paramètres du modèle de réaction, une marginalisation bayésienne est utilisée. Deux méthodes de marginalisation sont implémentées dans CONRAD :

- une stochastique (Monte-Carlo) (MC-GLS)
- une analytique (M-GLS) se basant sur l'hypothèse de densités de probabilité gaussiennes.
- Propagation des incertitudes des paramètres fixés lors de l'analyse ;
- Assimilation analytique/Monte-Carlo des mesures intégrales.

#### 1.3.2.1.2 Prise en compte des expériences intégrales dans l'évaluation

Dès les années 1970, en particulier au CEA Cadarache, des travaux ont été entrepris pour que les données issues d'expériences intégrales soient prises suffisamment tôt dans le processus d'évaluation des données nucléaires. Le réajustement des paramètres des modèles de réactions nucléaires sur l'expérience intégrale se fait dans le même cadre Bayésien que pour l'ajustement sur des expériences différentielles et consiste à minimiser une fonction des moindres carrés généralisés [CRI-20]. L'ajustement sur des données intégrales est précédé d'une sélection des paramètres de modèle, basée sur :

- le calcul de coefficients de régression standard qui indiquent l'influence des paramètres du modèle choisi sur la grandeur intégrale étudiée.
- le calcul de la sensibilité des paramètres aux sections efficaces pour vérifier que leur domaine d'influence corresponde à celui de la grandeur intégrale.

Pour illustrer l'apport des expériences intégrales dans le retour sur les données nucléaires, nous nous appuyons sur les résultats des campagnes d'oscillation de produits de fission séparés dans la maquette MINERVE lors du programme Crédit Burn-up. L'interprétation de ces expériences basée sur



l'évaluation JEF2 [CRI-21] a mis en particulier en évidence les tendances suivantes et entraîné en conséquence des modifications dans la nouvelle évaluation JEFF-3.1.1 [CRI-10] :

- sous-estimation de la capture de 4% du  $^{149}\text{Sm}$  impliquant une augmentation de 3% de sa section de capture ;
- sous-estimation de la capture de 4% du  $^{143}\text{Nd}$  impliquant une augmentation de sa section de capture ;
- surestimation de la capture de 7% du  $^{133}\text{Cs}$  conduisant à l'adoption des paramètres de résonance mesurés par Nakajima ;
- surestimation de la capture de 10% du  $^{103}\text{Rh}$  conduisant à de nouvelles mesures différentielles à l'IRMM de Geel (LINAC GELINA) et à la diminution de sa section de capture de 2% et de son intégrale de résonance de 5% .

Des études prenant en compte les résultats du programme d'oscillation de produits de fission séparés Crédit Burn-up dans MINERVE sont actuellement menées avec CONRAD pour les isotopes  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{103}\text{Rh}$  et  $^{241}\text{Am}$  pour convertir les tendances intégrales observées en section efficace de réaction pour JEFF-3.1.1 [CRI-22].

### 1.3.2.2 Evaluation JEFF-3.1.1

L'évaluation JEFF-3.1.1, publiée début 2009 [CRI-3] [CRI-23] est la dernière version de la bibliothèque de données du projet de fichier commun européen des données évaluées sur la fission et la fusion. Elle bénéficie de quinze années d'expérimentations et de validation expérimentale. JEFF-3.1.1 est utilisée aussi bien pour des applications REP que REB (package ARCADIA AREVA-NP). Les améliorations apportées aux données nucléaires des actinides et des produits de fission qui intéressent les études Crédit Burn-up par rapport à l'évaluation JEF-2.2 sont décrites dans les Tableaux 1.2 et 1.3. On note que ces avancées sur les données nucléaires ont permis d'améliorer la précision des calculs de bilan matière et de l'effet en réactivité [CRI-3] [CRI-23].

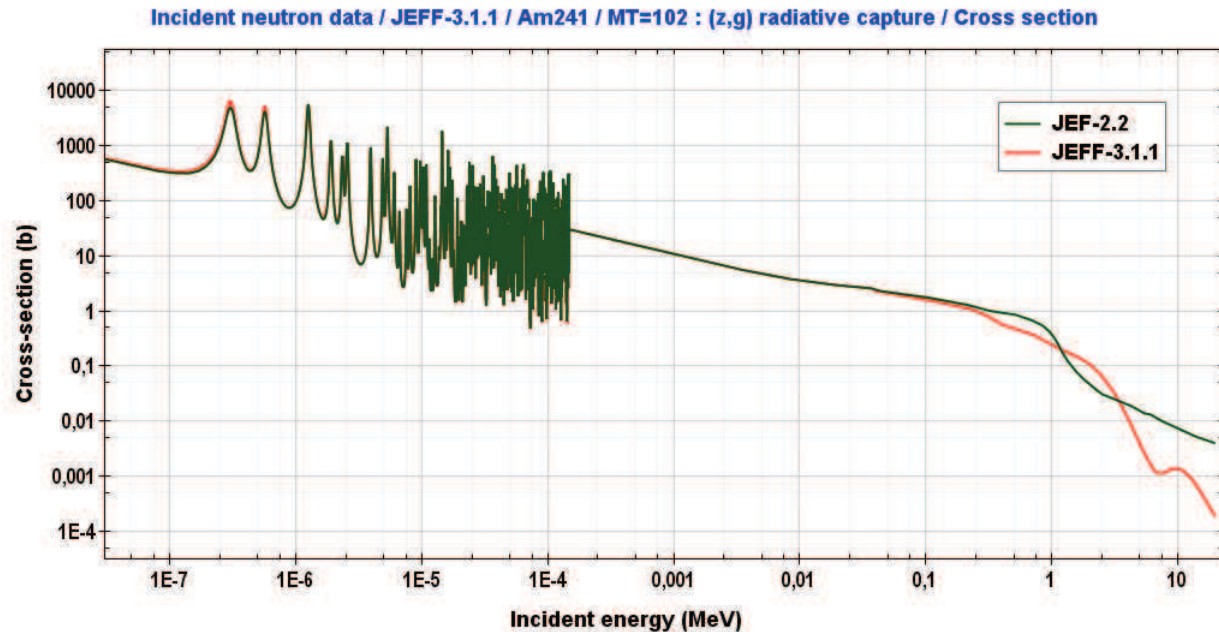
#### • Actinides

Modification JEFF-3.1.1 par rapport à JEF-2.2					
Actinide	$\sigma_c (n,\gamma)$	$\sigma (n,2n)$	$\sigma_f$	Intégrale de Résonance $I_R$	Autres Modifications
<sup>234</sup> U	-3,2 %	/	diminution	-4,3 %	
<sup>235</sup> U	/	/	/	+6 %	
<sup>236</sup> U	/	/	/	/	
<sup>238</sup> U	/	+10 %		-0,6 %	
<sup>238</sup> Pu	+3 %	/	/	/	
<sup>239</sup> Pu	Amélioration de l'évaluation dans le domaine rapide				Forme de la section thermique
<sup>240</sup> Pu	-1 %	/	/	/	
<sup>241</sup> Pu	/	/	-1,7 %	+6,4 %	
<sup>242</sup> Pu	/	/	/	+1,3 %	
<sup>241</sup> Am	+5 %	/	/	+5,5 %	
<sup>242m</sup> Am	- 32 %	/	-7 %	/	Modification des rapports de branchement vers <sup>242m</sup> Am et <sup>242f</sup> Am
<sup>243</sup> Am	Pas de modification significative des données				
<sup>243</sup> Cm	+14 %	/	+43,13 %	-30,3 %	
<sup>244</sup> Cm	-28 %	/	/	/	
<sup>245</sup> Cm	+3,7 %	-14 %	/	/	
<sup>237</sup> Np	diminution	/	/	/	

Tableau 1.2 – Modifications principales apportées dans JEFF-3.1.1 par rapport à JEF-2.2 pour les actinides du CBU REP-UOx et REP-MOx

La Figure 1.12 illustre l'exemple de l'<sup>241</sup>Am. Dans le but d'améliorer le calcul du vieillissement du Plutonium et la prédiction de l'inventaire en actinides mineurs [CRI-3], une nouvelle évaluation de l'<sup>241</sup>Am a été proposée pour JEFF-3.1.1. En prenant en compte quatre types d'informations intégrales, (analyses chimiques pour mesure du ratio <sup>241</sup>Am/<sup>241</sup>Pu, mesure de la teneur en <sup>242</sup>Cm et <sup>243</sup>Cm à faible burn up, mesure d'antiréactivité due au vieillissement du plutonium dans le réacteur EOLE (cœurs MOx MISTRAL2 et MISTRAL3), irradiation d'un échantillon de <sup>241</sup>Am séparé-expérience ICARE dans le réacteur MELUSINE du CEA Grenoble), les modifications suivantes ont été effectuées par rapport à l'évaluation précédente :

- augmentation de sa section de capture de +5% dans le domaine 0.01-2 eV ;
- augmentation du rapport de branchement <sup>241</sup>Am → <sup>242m</sup>Am.

Figure 1.12 – Comparaison de la section de capture radiative de l'<sup>241</sup>Am JEF-2.2/JEFF-3.1.1

- **Produits de fission**

Le Tableau 1.3 présente les modifications entre les évaluations JEFF-3.1.1 et JEF-2.2 ayant affectés les 15 produits de fission du CBU REP-MOx.

Produit de Fission	Modification JEFF-3.1.1 par rapport à JEF-2.2				
	$\sigma_c (n,\gamma)$	$\sigma (n,2n)$	$\sigma_f$	Intégrale de Résonance $I_R$	Autres Modifications
<sup>103</sup> Rh	-1,7 %	/	/	-4,6 %	
<sup>149</sup> Sm	+3 %	/	/	/	Formation via la capture du <sup>147</sup> Pm et du <sup>148</sup> Pm notablement diminuée
<sup>155</sup> Gd	Pas de modification significative des données				Amélioration du bilan matière de ses pères ( <sup>155</sup> Eu, <sup>154</sup> Gd) Augmentation de la constante de désintégration de l' <sup>155</sup> Eu
<sup>151</sup> Sm	Pas de modification significative des données				
<sup>143</sup> Nd	+4 %	/	/	+2 %	
<sup>133</sup> Cs	/	/	/	-4 %	
<sup>109</sup> Ag	Pas de modification significative des données				
<sup>152</sup> Sm	Pas de modification significative des données				
<sup>153</sup> Eu	+3 %	/	/	/	
<sup>99</sup> Tc	+10 %	/	/	+3 %	
<sup>145</sup> Nd	Pas de modification significative des données				
<sup>101</sup> Ru	Pas de modification significative des données				
<sup>147</sup> Sm	Pas de modification significative des données				
<sup>95</sup> Mo	Pas de modification significative des données				
<sup>150</sup> Sm	Pas de modification significative des données				

Tableau 1.3 – Modifications principales apportées dans JEFF-3.1.1 par rapport à JEF-2.2 pour les 15 produits de fission du CBU REP-UOx et REP-MOx

On notera que les évaluations JEF-2.2 très approximatives de  $^{154}\text{Eu}$  et  $^{155}\text{Eu}$  ont été remplacées par des évaluations très satisfaisantes dans JEFF-3.1.1 : cela permet de prédire désormais correctement la formation du  $^{155}\text{Eu}$  et  $^{155}\text{Gd}$  dans les combustibles irradiés. La Figure 1.13 illustre l'exemple du  $^{149}\text{Sm}$  évoqué au paragraphe 1.3.2.1.1.

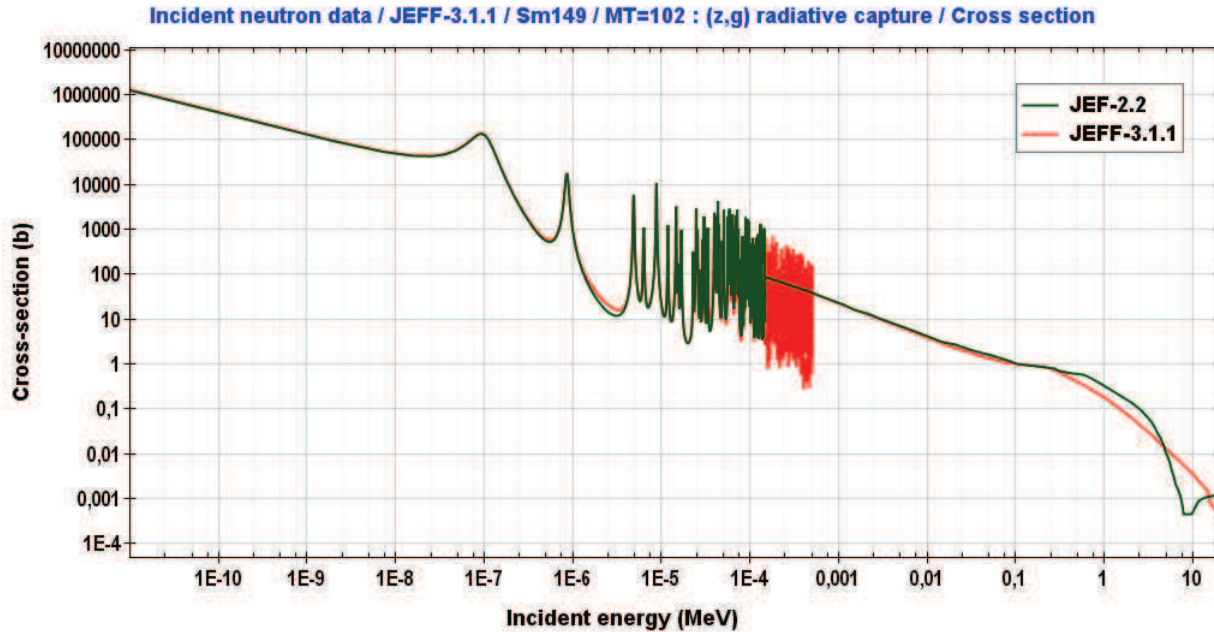


Figure 1.13 – Comparaison de la section de capture radiative du  $^{149}\text{Sm}$  JEF-2.2/JEFF-3.1.1

La validation de JEFF-3.1.1 s'est appuyée sur les codes APOLLO2.8 (déterministe) et TRIPOLI-4 (probabiliste) [CRI-3].

### 1.3.3 Construction de bibliothèques applicatives

En pratique, comme nous l'avons évoqué au paragraphe 2.2, les données nucléaires issues des évaluations doivent être traitées pour pouvoir être utilisées dans la résolution de l'équation de Boltzmann. En effet, concernant en particulier les sections efficaces, les évaluations ne contiennent que des informations du type paramètres de résonance et lois de transfert angulaire pour différentes énergies incidentes du neutron. Des bibliothèques applicatives vont ainsi être réalisées. Elles sont de deux types :

- *Bibliothèques ponctuelles* pour les codes probabilistes (TRIPOLI-4) : les données nucléaires sont représentées ponctuellement en énergie ;
- *Bibliothèques multigroupes* pour les codes déterministes (APOLLO2) : un maillage énergétique multigroupe est choisi et les données nucléaires ponctuelles sont alors approchées par une fonction en escalier sur ce maillage. Suivant le type de problème abordé et la précision du résultat souhaitée, il existe différents maillages disponibles (à 172, 281 [CRI-6], 361 [CRI-24], 6064 [CRI-25] groupes par exemple et maillages dits « adaptatifs »). Citons par exemple les bibliothèques APOLLO2 CEA93.G172.V10.2, basée sur JEF-2.2, CEA2005V4.1, basée sur JEFF-3.1.1, CEA\_JDL33.G172.V1 basée sur JENDL-3.3 et CEA\_B7.V0.1, basée sur ENDF/B-VII.V0.1. Le module 'AUTOP' d'APOLLO2 permet de corriger les sections moyennes par des sections multigroupes autoprotégées dans le domaine des résonances [CRI-26].

Dans le cadre CEA, les codes américain NJOY [CRI-27] (incluant le calcul de sections effectives sur une grille de dilution et de températures) et français CALENDF [CRI-28] (génération de tables de

probabilités pour le traitement des isotopes résonnants dans le domaine non-résolu), largement basé sur l'utilisation de la quadrature de Gauss, appartenant à l'outil GALILEE (Figure 1.14) [CRI-29], permettent la création de bibliothèques applicatives. La finalité de GALILEE est de produire des bibliothèques d'application cohérentes entre les codes utilisés (transport déterministe et probabiliste, évolution) pour permettre notamment de pouvoir s'affranchir des effets de schéma de calcul lors d'une validation d'un calcul déterministe (APOLLO2) par rapport à un calcul probabiliste (TRIPOLI-4). L'interface directe avec CONRAD, permet à l'outil GALILEE de bénéficier d'une information enrichie venant directement du système d'évaluation.

Pour construire une bibliothèque applicative à partir des éléments présents dans les fichiers d'évaluation au format ENDF, le code NJOY fait appel aux modules suivants :

- RECONR : reconstruction des sections ponctuelles à 0 K à partir des paramètres de résonance et des schémas d'interpolation ;
- BROADR : effectue l'élargissement Doppler des sections ponctuelles à la température souhaitée ;
- THERMR : dans le domaine thermique, calcul des sections efficaces de diffusion et des matrices de transferts énergétiques en modèle « gaz libre » ou en prenant en considération les liaisons cristallines ;
- UNRESR : calcul des sections effectives ponctuelles autoprotégées dans le domaine non résolu.

Le module GROUPE permet le calcul sur un maillage énergétique donné des grandeurs multigroupes telles que sections effectives, matrices de transfert, nombre de neutrons émis par fission, taux de réaction effectifs tabulés en fonction de la température et de la dilution, flux de structure fine. Ce module fait appel à un flux de pondération pour moyenner les données ponctuelles, de formes différentes selon le domaine d'énergie considéré. On adopte généralement :

- Spectre de fission au dessus de 1,3 MeV ;
- Spectre de ralentissement en  $1/E$  au dessus de 0.1 eV ;
- Spectre de Maxwell en dessous de 0.1 eV.

Pour les isotopes non-résonnants ou dans le cas d'un maillage énergétique très fin, ce flux de pondération donne des sections efficaces multigroupes correctes mais dès lors que des isotopes résonnants sont présents ou que l'on souhaite travailler avec un maillage énergétique plus grossier, le phénomène d'autoprotection doit impérativement être traité. Les données ponctuelles générées par NJOY sont finalement regroupées dans un fichier au format PENDF (Pointwise Evaluated Nuclear Data File) et les données multigroupes dans un fichier au format dit GENDF (Groupwise Evaluated Nuclear Data File). Pour que les données puissent être enfin utilisées par APOLLO2, le code N2A2 regroupe les fichiers issus de CALENDF et le fichier GENDF dans une structure nommée « APOLIB », bibliothèque interne contenant des listes d'isotopes, du maillage et des rendements de fission. L'ensemble du traitement s'effectue en lançant un script PERL.

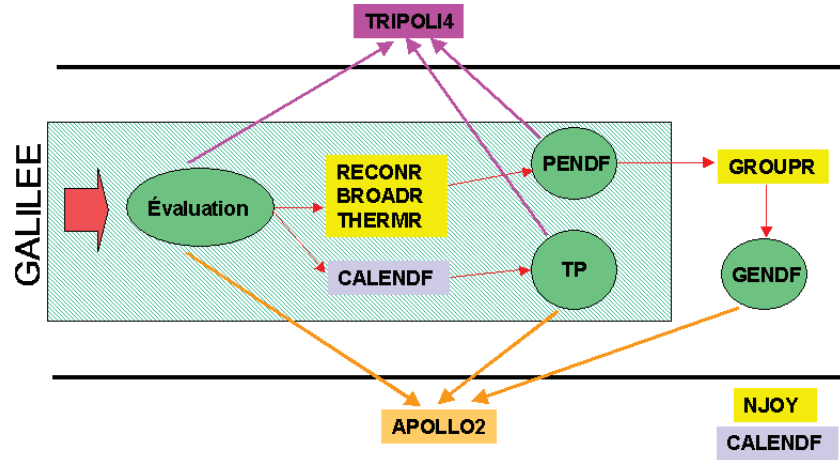


Figure 1.14 – Chaîne de traitement des données nucléaires GALILEE pour les codes déterministe APOLLO2 et probabiliste TRIPOLI-4



## 1.4 Description de la population neutronique : principe de calcul et méthodes numériques

La résolution de l'équation du transport neutronique peut s'effectuer suivant une approche soit déterministe soit probabiliste. L'approche déterministe consiste à résoudre une forme discrétisée de l'équation sous forme integro-différentielle en utilisant les méthodes Sn et nodales ou intégrale grâce aux méthodes des probabilités de première collision ( $P_{ij}$ ) ou des caractéristiques (MOC) tandis que l'approche probabiliste (méthode de Monte-Carlo) cherche à reproduire les phénomènes d'interaction entre les neutrons et la matière. N'effectuant (en principe) aucune approximation de l'équation du transport, l'approche probabiliste permet de valider les résultats de calculs déterministes car elle permet de s'affranchir des effets de schéma de calcul. Après avoir présenté les deux formes de l'équation du transport, nous présenterons deux des méthodes de calcul ( $P_{ij}$  et MOC) utilisées par le code déterministe APOLLO2 dont nous détaillerons les spécificités puis l'approche de résolution probabiliste au travers de la présentation du code Monte-Carlo TRIPOLI-4.

### 1.4.1 Equation du transport neutronique

Dans un réacteur, la densité de neutrons étant très faible, l'ensemble de la population neutronique peut être assimilée à un gaz. Le comportement des neutrons peut ainsi être vu comme celui d'un gaz dont certaines molécules disparaîtraient au cours de certains chocs. L'équation rendant compte du comportement des particules d'un gaz sans interaction entre elles ayant été établie en 1879 par Boltzmann, l'équation du transport neutronique est appelée « équation de Boltzmann » car la densité des neutrons au sein du réacteur étant faible, on néglige les interactions entre eux.

Suivant le traitement que l'on souhaite lui appliquer, cette équation peut s'écrire sous forme intégrale ou integro-différentielle et résulte d'un bilan neutronique effectué sur un volume élémentaire de réacteur.

#### 1.4.1.1 Forme integro-différentielle

Soit un volume élémentaire de réacteur. Les neutrons qui arrivent dans ce volume sont soit issus d'une source qui y est placée soit proviennent du ralentissement (y sont diffusés) et ceux qui y disparaissent sont soit diffusés, soit absorbés ou fuient. Nous noterons :

- la densité neutronique  $n$ , dépendante de l'espace ( $\vec{r}$ ), de la vitesse  $v$  des neutrons, de leur direction ( $\vec{\Omega}$ ) et du temps ( $t$ ) ;
- la source  $S$  ;
- la section efficace macroscopique de diffusion  $\Sigma_S$  ;
- la section efficace macroscopique totale  $\Sigma_t$  ;
- le flux neutronique  $\Phi$ , produit de la densité par la vitesse des neutrons ;

Le terme de production, somme des neutrons issus de la source et des neutrons diffusés suite à un choc (changement d'énergie et de direction) s'écrit alors :

$$S(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) + \int_0^\infty dv' \int_{4\pi} \Sigma_S(\vec{r}, v' \rightarrow v, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, t) \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) d^2\Omega'$$

le terme de disparition s'écrit comme la somme du terme de « réaction » et de fuite :

$$\Sigma_t(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) + \vec{\Omega} \cdot \vec{\nabla} \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)$$

La variation de la population neutronique dans le volume élémentaire au cours du temps est donc :

$$\frac{\partial n(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} = \text{production} - \text{disparition}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} &= S(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \\ &+ \int_0^\infty dv' \int_{4\pi} \Sigma_S(\vec{r}, v' \rightarrow v, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, t) \phi(\vec{r}, v', \vec{\Omega}', t) d^2\Omega' - \Sigma_t(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \\ &- \vec{\Omega} \text{grad} \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) \end{aligned}$$

Cette forme se prête bien à une résolution par la méthode des harmoniques sphériques ou des ordonnées discrètes.

Dans le cas de nos études de criticité (hors situation accidentelle), des approximations peuvent être envisagées :

- régime stationnaire :

$$\begin{aligned} &S(\vec{r}, v, \vec{\Omega}) \\ &+ \int_0^\infty dE' \int_{4\pi} \Sigma_S(\vec{r}, E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}) \phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}') d^2\Omega' \\ &- \Sigma_t(\vec{r}, v, \vec{\Omega}) \phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) - \vec{\Omega} \text{grad} \phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}) \\ &= 0 \end{aligned}$$

- régime stationnaire et choc isotrope : la section de diffusion peut s'écrire :

$$\Sigma_S(\vec{r}, \Omega' \rightarrow \Omega, v' \rightarrow v) = \frac{\Sigma_S(\vec{r}, v' \rightarrow v)}{4\pi}$$

- régime stationnaire et choc linéairement anisotrope : la section de diffusion est une fonction linéaire du cosinus de l'angle de déviation noté  $\mu_0 = \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}'$  et peut être représentée grâce à un développement en polynômes de Legendre :

$$\Sigma_S(\vec{r}, v' \rightarrow v, \vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}') = \frac{1}{4\pi} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \Sigma_{sl}(\vec{r}, v' \rightarrow v) P_l(\vec{\Omega} \cdot \vec{\Omega}')$$

où les coefficients  $\Sigma_{sl}$  sont obtenus par projection :

$$\Sigma_{sl}(\vec{r}, v' \rightarrow v) = \int_{-1}^1 d\mu_0 \Sigma_S(\vec{r}, v' \rightarrow v, \mu_0) P_l(\mu_0). \quad (1.5)$$

#### 1.4.1.2 Forme intégrale

Il est possible de l'obtenir par intégration de l'équation intégral-différentielle par rapport à l'espace et au temps mais plus simplement suivant le cheminement des neutrons. Les neutrons observés en un point B, de vitesse  $v$ , à l'instant  $t$  et se dirigeant dans la direction  $\vec{\Omega}$  sont ceux qui ont quitté l'ensemble des points A, à la vitesse  $v$ , à l'instant  $t$ , dans la direction  $\vec{\Omega}$  et qui ont parcouru la distance AB sans subir de choc.

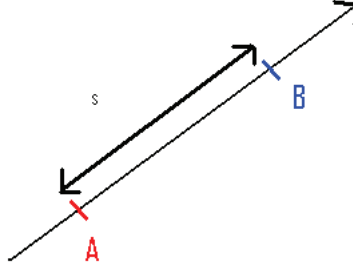


Figure 1.15 – Etablissement de la forme intégrale de l'équation de Boltzmann

Le nombre de départs en un point  $r$ , à la vitesse  $v$ , dans la direction  $\vec{\Omega}$  et à l'instant  $t$  est :

$$q(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) = \int_0^\infty dv' \int_{4\pi} \Sigma_S(\vec{r}, v' \rightarrow v, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, t) \phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) d^2\Omega' + S(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t)$$

Entre  $A$  et  $B$  la probabilité de non choc, analogue d'un chemin optique, s'écrit :

$$\exp\left(-\int_A^B \Sigma_t(\vec{r}, v) ds\right)$$

et se note  $e^{-\bar{\Sigma}s}$ , d'où l'expression de la forme intégrale de l'équation de Boltzmann

$$\phi(\vec{r}, v, \vec{\Omega}, t) = \int_0^\infty e^{-\bar{\Sigma}s} q\left(\vec{r} - s\vec{\Omega}, v, \vec{\Omega}, t - \frac{s}{v}\right) ds$$

Si le domaine sur lequel on considère l'équation précédente est fini, on remplace  $\int_0^\infty$  par  $\int_0^{s_{max}}$  avec  $s_{max}$  défini tel que  $\vec{r} - s_{max}\vec{\Omega}$  soit un point de la surface limitant ce domaine. Cette forme se prête bien à une résolution par la méthode des probabilités de collision.

Suivant les hypothèses envisagées, la forme intégrale prend en compte les approximations évoquées dans le paragraphe 1.4.1.1.

## 1.4.2 Codes de simulation neutronique déterministes

La résolution de l'équation du transport neutronique peut s'effectuer à l'aide de deux approches différentes : déterministe et probabiliste. La première approche effectue une résolution de l'une des deux formes discrétisées en énergie et en espace de l'équation, la seconde, plus précise mais plus coûteuse en temps de calcul, consiste à simuler le plus précisément possible le parcours des neutrons dans la matière sans avoir à expliciter l'équation du transport. Les méthodes déterministes sont validées par comparaison aux méthodes probabilistes.

Ce paragraphe s'appuiera sur les méthodes de résolution mises en œuvre dans le code APOLLO2 développé par le DM2S/SERMA et bénéficiant des études de validation et de qualification du DER/SPRC.

Dans le cas de l'utilisation d'un code déterministe tel que APOLLO2, la résolution numérique de l'équation de Boltzmann s'effectue selon l'algorithme suivant :

- Suite à la discrétisation du domaine énergétique, résolution itérative dans chacun des groupes définis de l'équation multigroupe pour toutes les directions angulaires et toutes les régions spatiales avec mise à jour de la source de collision dans chacun des groupes ;

- mise à jour de la source de fission ;  
et ce jusqu'à convergence.

APOLLO2 est un code déterministe modulaire développé par le CEA avec l'appui d'AREVA et d'EDF réalisant des calculs multicellules de transport multigroupe à deux dimensions. Les différents modules qui le composent sont indépendants les uns des autres et effectuent chacun une tâche précise (construction de la géométrie, autoprotection,...) [CRI-30] [APPLI-20]. La résolution de l'équation du transport peut être effectuée soit par la méthode des probabilités de collision ( $P_{ij}$ ), soit par des méthodes Sn à différences finies, nodales ou des caractéristiques [CRI-26]. Il est utilisé à la fois pour des applications de physique des réacteurs, de sûreté-criticité et d'analyse du cycle du combustible. Dans ce cadre, il permet en particulier de réaliser des bibliothèques de sections efficaces multigroupes servant de base à un calcul d'évolution effectué par exemple par le formulaire DARWIN. APOLLO2 est un composant du formulaire de criticité CRISTAL.

#### 1.4.2.1 Données d'entrée et de sortie

Les données d'entrée sont :

- description de la situation étudiée (géométrie, composition, températures) ;
- options de calcul ;
- options de sortie ;

Les données de sortie sont :

- des grandeurs globales telles que  $k_{\text{eff}}$ , Laplacien,  $k_{\text{inf}}$  ;
- des valeurs de flux moyen et intégré en léthargie et en espace ;
- des taux de réaction par noyau et/ou par milieu, par groupe et type de réaction ;
- des constantes pour d'éventuels calculs de diffusion ;
- des concentrations de noyaux évoluant dans le cas d'un calcul d'évolution.

#### 1.4.2.2 Discrétisation de la variable énergétique : formalisme multigroupe

Le formalisme multigroupe consiste à subdiviser le domaine énergétique des neutrons considérés en intervalles dans lesquels les fonctions continues en énergie telles que les sections efficaces ou encore le flux neutronique sont approximées par des constantes. L'équation du transport ne présentant pas de solution analytique hormis pour des cas extrêmement simples, il est en effet apparu judicieux de discrétiser le domaine énergétique dans le cadre d'un compromis temps de calcul/précision. Cette approximation est l'une des principales sources d'erreur lors de l'utilisation du code. En un point  $\vec{r}$ , le flux multigroupe s'écrit par définition comme l'intégrale du flux réel sur le groupe considéré  $g$  :

$$\Phi_g = \int_{E_{g-1}}^{E_g} \Phi(\vec{r}, E) dE$$

Pour calculer les sections efficaces multigroupes, on veille à la conservation du taux de réaction [CRI-2]. Elles sont alors définies comme la moyenne en chaque point des sections efficaces réelles pondérées par le flux réel d'où :

$$\Phi_g(\vec{r}) = \frac{\int_{E_{g-1}}^{E_g} \sigma(E) \Phi(\vec{r}, E) dE}{\int_{E_{g-1}}^{E_g} \Phi(\vec{r}, E) dE}$$

Cette définition est formelle puisque nécessitant de connaître le flux exact  $\Phi(\vec{r}, E)$ , l'inconnue du problème. De ce fait, pour cette pondération permettant d'obtenir les sections efficaces multigroupes,

on remplace ce flux exact par un flux dit « de pondération » sur chaque zone homogène (par rapport à la longueur de migration) de la géométrie considérée, choisi a priori et le plus semblable possible au flux exact. L'approximation multigroupe sera d'autant meilleure que le découpage énergétique choisi sera fin, car les sections efficaces seront moins sensibles au choix de ce flux de pondération. Elle est acceptable aussi bien pour les noyaux non résonnants que résonnants en dehors du domaine des résonances.

### 1.4.2.3 Particularités des sections efficaces partielles utilisées par APOLLO2

La définition des sections efficaces partielles utilisées par APOLLO2 ne correspond pas forcément à leur définition physique, hormis dans le cas des sections de fission, ainsi :

- Les différentes sections de transfert sont regroupées en une seule section de transfert ;
- Les sections de diffusion élastiques et inélastiques forment une unique section de diffusion ;
- Les sections des réactions produisant plusieurs neutrons (hors fissions) sont regroupées dans une section dite « d'excès » fictive mais permettant un calcul correct du bilan neutronique ;
- La section de capture englobe la section de capture radiative et les sections des réactions ne produisant pas de neutrons ;
- Une section de fuite, fictive, modélise les fuites par une absorption supplémentaire du système.

### 1.4.2.4 Discrétisation des variables angulaire et spatiale

Contrairement au traitement de la variable d'énergie, les discrétisations des variables d'espace,  $\vec{r}$  et  $\vec{\Omega}$  dépendent du choix de la méthode retenue pour le calcul du flux multigroupe [CRI-32]. Les *méthodes des ordonnées discrètes*, utilisant la forme intégral-différentielle de l'équation du transport consistent ainsi à discrétiser la variable angulaire du flux, la discrétisation spatiale pouvant alors être menée en utilisant différentes sous-méthodes (méthodes du type éléments finis, nodales ou des caractéristiques). Ces méthodes consistent à résoudre l'équation vérifiée par le flux angulaire uniquement dans un nombre fini de directions et approche les intégrales angulaires par une formule de quadrature de type Gauss. Parmi elles, nous nous intéresserons plus particulièrement à la méthode des caractéristiques. La *méthode des probabilités de première collision* (ou méthode  $P_{ij}$ ), basée sur la forme intégrale de l'équation du transport, ne traite pas explicitement la dépendance en angle du flux et se contente d'une discrétisation spatiale de l'équation. APOLLO2 permet d'utiliser indifféremment l'une ou l'autre de ces deux méthodes que nous allons à présent évoquer.

#### 1.4.2.4.1 Méthode des probabilités de collision ( $P_{ij}$ ) pour un groupe d'énergie donné

Les notations de ce paragraphe sont en majorité tirées de [CRI-2]. Cette méthode est basée sur la discrétisation par rapport à l'espace de l'équation du transport sous sa forme intégrale. Chacune des zones homogènes de la géométrie (contenant un seul milieu) est discrétisée en petits volumes élémentaire  $V_i$ . En faisant l'hypothèse de sources et de chocs isotropes, l'équation du transport

$$\phi(r) = \int_{\infty} \frac{e^{-\Sigma_i |\vec{r} - \vec{r}'|}}{4\pi |\vec{r} - \vec{r}'|^2} [\Sigma_s(\vec{r}')\phi(\vec{r}') + S(\vec{r}')] d^3 r'$$

peut s'écrire en tenant compte de la discrétisation et en intégrant sur le volume  $V_i$  :

$$V_i \Sigma_{ti} \bar{\phi}_i = \sum_j \tilde{P}_{ji} V_j (\Sigma_{sj} \bar{\phi}_j + S_j)$$

avec :  $\Sigma_{ti}$  et  $\Sigma_{si}$  expression des sections efficaces dans  $V_i$ ,

$$S_i = \frac{1}{V_i} \int_{V_i} S(\vec{r}) d^3r$$

source moyenne dans  $V_i$  ;

$$\phi_i = \frac{1}{V_i} \int_{V_i} \phi(\vec{r}) d^3r$$

flux moyen dans  $V_i$  ;

$$\tilde{P}_{ji} = \frac{\int_{V_j} \Sigma_t(\vec{r}') d^3r' \int_{V_i} Q(\vec{r}) \frac{e^{-\Sigma_t R}}{4\pi R^2} d^3r}{\int_{V_i} Q(\vec{r}) d^3r}$$

probabilité pour un neutron émis selon la densité  $Q(\vec{r}) = \Sigma(\vec{r})\Phi(\vec{r}) + S(\vec{r})$  de façon isotrope dans  $V_i$  de subir sa première collision dans  $V_j$ . Cette expression exacte de  $\tilde{P}_{ji}$  n'étant pas utilisable en pratique puisque  $\Phi(\vec{r})$  est inconnu car recherché, elle est remplacée par sa valeur moyenne dans chaque volume élémentaire. Dans chacun des volumes  $V_i$ , de dimensions suffisamment faibles, en faisant l'hypothèse d'un choc isotrope, on approxime alors la densité d'émission par sa valeur moyenne  $\bar{Q}_i = \frac{1}{V_i} \int_{V_i} Q(\vec{r}) d^3r$ . On obtient ainsi l'expression

$$V_i \Sigma_{ti} \bar{\phi}_i = \sum_j P_{ji} V_j (\Sigma_{sj} \bar{\phi}_j + S_j)$$

avec

$$P_{ji} = \frac{\Sigma_{tj}}{V_i} \int d^3r' \int \frac{e^{-\Sigma_t R}}{4\pi R^2} d^3r$$

La méthode consiste alors à :

- calculer numériquement grâce à une méthode de quadrature dans chaque groupe d'énergie les  $P_{ji_g}$  ;

$$P_{ji_g} = \frac{\Sigma_{ig}}{V_j} \int_i d^3r \int_j \frac{e^{-\tau_g}}{4\pi R^2} d^3r';$$

- effectuer une itération « externe » pour initialiser les sources de fission ;
- calculer le flux dans chaque groupe d'énergie en fonction de la densité d'émission en résolvant le système linéaire  $V_i \Sigma_{i,g} \bar{\Phi}_{i,g} = \sum_{j=1}^N V_j \bar{Q}_{j,g} P_{ji_g}$  en partant du groupe  $g=1$  ;
- initialiser le flux thermique par un flux maxwellien à la température du problème par itération « internes » pour recalculer la source de fission dans les groupes thermiques ;
- lorsque le critère de convergence du calcul est atteint, les itérations « externes » s'arrêtent. Pour le calcul de problèmes concernant les REP, il existe essentiellement deux variantes utilisables de la méthode des probabilités de première collision :
- la méthode dite « 2D exacte », basée sur un calcul des matrices des probabilités  $P_{ij}$  dans les différentes zones constituant la géométrie par intégration des noyaux de transport correspondants sur des cordes ;
- la seconde, dite « multicellule », basée sur le couplage par le biais de courants d'interface de l'ensemble des régions formant la géométrie permettant de ne calculer que les matrices pour lesquelles les indices  $i$  et  $j$  sont relatifs à la même cellule. Celle-ci, moins précise, est cependant plus couramment utilisée car moins coûteuse en temps de calcul.



Le code APOLLO2 permet d'employer différentes options pour le calcul des probabilités de première collision selon le degré de précision souhaité. Citons ici celles couramment mises en œuvre pour les études de sûreté-criticité :

- modèle ROTH : la cellule réelle est cylindrisée pour le calcul des probabilités de collision à l'intérieur de celle-ci et pour celui des probabilités de transmission ;
- modèle UP0 : différencie les faces de la cellule réelle pour respecter la nullité de la probabilité de transmission d'une face de la cellule avec elle-même. Il offre deux possibilités pour effectuer le calcul des probabilités de collision à l'intérieur de la cellule : calcul sur la cellule cylindrisée (modèle de ROTH généralisé correspondant aux données &UP0 &ROTH) ou sur la cellule carrée ou hexagonale (options &UP0 &HETE). Les flux angulaires sont considérés comme étant uniformes par face et isotropes en angle ;
- modèle UP1 : représente l'anisotropie des flux angulaires d'interface par un développement P1.

#### 1.4.2.4.2 Méthode des caractéristiques (MOC)

La méthode des caractéristiques permet le traitement de l'anisotropie de diffusion ainsi qu'une description hétérogène de la géométrie considérée sans pour autant nécessiter des temps de calculs excessifs. Il s'agit d'une méthode aux ordonnées discrètes. Le développement de cette méthode remonte aux années 50 (Vladimirov, 1959) [CRI-33] mais son utilisation pour le traitement de géométries 2D complexes n'a commencé qu'au cours des années 70 (Askew, 1972) [CRI-34], [CRI-35]. Cette méthode de résolution de l'équation du transport a été pour la première fois utilisée par le code CACTUS (Halsall, 1980) [CRI-36] et est largement utilisée aujourd'hui dans le monde par les codes de transport dont par exemple CASMO5 (Smith, 2000)[CRI-37] et APOLLO2 (solveur TDT) (Sanchez & Chetaine, 2000) [CRI-38], [CRI-39]. Le Tableau 1.4 présente la comparaison des performances des solveurs  $P_{ij}$  et MOC [CRI-40] pour deux applications :

		UO2	MOX	Temps CPU (s)
<b>TRIPOLI4 JEFF-3.1</b>	$k_{inf}$	1.32053	1.16102	
	$\sigma$ (pcm)	23	20	
<b>PIJ</b>	$k_{inf}$	1.31973	1.16118	0.3
	$\Delta\rho$ (pcm)	-46	12	
<b>MOC_s</b>	$k_{inf}$	1.31968	1.16166	8
	$\Delta\rho$ (pcm)	-49	47	

Tableau 1.4 – Comparaison solveurs APOLLO2 Pij et MOC (CEA2005)

La méthode des caractéristiques repose sur une discrétisation spatiale dans laquelle un domaine D est décomposé en N régions homogènes formant un maillage non structuré. Sur ce domaine D, une procédure dite « procédure de tracking » permet de générer un ensemble de lignes d'intégration ou caractéristiques dans ce domaine de direction  $\vec{\Omega}$  (Figure 1.16).

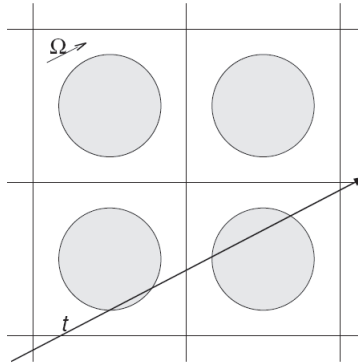


Figure 1.16 – Génération de caractéristique sur le domaine : procédure de tracking

Dans une région de section efficace  $\Sigma$  et de terme source  $S$ , l'équation du transport stationnaire sans collision peut s'écrire :

$$\vec{\Omega} \vec{\nabla} \Phi(\vec{r}) = -\Sigma \phi(\vec{r}) + S, \forall \vec{r} \in D$$

On note  $u_{\vec{r}_0(t)} = \phi(r_0 + t\vec{\Omega})$ . Pour tout  $\vec{r}_0$ ,  $u_{\vec{r}_0(t)}$  vérifie l'équation différentielle :

$$\frac{du_{\vec{r}_0}(t)}{dt} = \vec{\Omega} \vec{\nabla} \phi(\vec{r}_0 + t\vec{\Omega}) = -\Sigma u_{\vec{r}_0}(t) + S \quad (1.6)$$

qu'on peut intégrer pour obtenir :

$$\phi(\vec{r}_0 + t\vec{\Omega}) = \phi(\vec{r}_0) e^{-\Sigma t} \frac{1 - e^{-\Sigma t}}{\Sigma} S, \quad \forall r_0, \quad \forall t \text{ tels que } \vec{r}_0 + t\vec{\Omega} \in D \quad (1.7)$$

De 1.7 on déduit l'équation dite de transmission pour  $\vec{r}_0$  le point d'entrée de la caractéristique et  $\vec{r}_1 = \vec{r}_0 + t\vec{\Omega}$  celui de sortie le long de la trajectoire  $\Gamma$  :

$$\phi^+(\Gamma) = \phi^-(\Gamma) e^{-\Sigma l(\Gamma)} \frac{1 - e^{-\Sigma l(\Gamma)}}{\Sigma} S \quad (1.8)$$

Entre deux points d'une ligne caractéristique, on peut calculer un flux moyen à l'intérieur d'une région homogène  $t_1 = \|\vec{r}_1 - \vec{r}_0\|$  étant la distance entre ces deux points :

$$\phi(r_1, r_2) = \frac{1}{t_1} \int_0^{t_1} \phi(r_0 + t\vec{\Omega}) dt = \frac{\phi(r_0) - \phi(r_1)}{\Sigma t_1} + \frac{S}{\Sigma} \quad (1.9)$$

L'équation est appelée équation de bilan. Du fait que les équations de bilan et de transmission ne permettent de calculer le flux qu'à l'intérieur d'une région homogène, la méthode MOC nécessite de faire l'hypothèse que termes sources et sections efficaces sont constants à l'intérieur de chaque région du maillage [CRI-39].

Chaque caractéristique interceptant le domaine D peut être décomposée en une suite de segments, définis par les intersections de la caractéristique avec les frontières des régions. On obtient ainsi un ensemble discret de points entre lesquels l'approximation de région homogène permet d'appliquer les équations de bilan et de transmission. Le flux angulaire moyen peut ainsi être calculé sur chacun des segments le long de la caractéristique en utilisant les conditions aux limites de la région d'entrée par application successive de ces équations : c'est l'opération de balayage de la caractéristique, nécessitant peu d'informations sur la géométrie. Cependant, pour obtenir le flux angulaire moyen dans chaque région, il faut utiliser une formule d'intégration transverse. Dans la région  $R_i$ , le flux angulaire moyen s'écrit :

$$\bar{\phi}_i = \frac{1}{V_i} \int_{r_-} d\vec{r}_\perp \int_t \phi(\vec{\Omega}_\perp + t\vec{\Omega}) dt = \frac{1}{V_i} \int_{r_-} l_i(\Gamma_{r_{bot}}) \bar{\phi}(\Gamma_{r_\perp})$$

Avec  $\Gamma_{r_\perp}$  la droite caractéristique associée à la coordonnée transverse ;  $V_i$  le volume associé à la région  $R_i$  ;  $l_i(\Gamma_{r_\perp})$  la longueur de corde et  $\bar{\phi}(\Gamma_{r_\perp})$  le flux moyen, associés à la trajectoire.

L'intégrale est approximée à l'aide d'une formule de quadrature obtenue en considérant que la région étudiée est recouverte d'un ensemble de trajectoires parallèles (Figure 1.17), la section  $\Delta k$  du tube entourant fictivement chacune de ces trajectoires étant associé comme poids à celle-ci d'où

$$\int_{r_-} l_i(\Gamma_{r_\perp}) \bar{\phi}_i(\Gamma_{r_\perp}) = \sum_k \Delta k l_k^i \phi_k^i \quad (1.10)$$

ce qui conduit à l'expression du flux angulaire moyen dans  $R_i$  :

$$\bar{\phi}_i = \frac{\sum_k \Delta k l_k^i \phi_k^i}{\sum_k \Delta k l_k^i} \quad (1.11)$$

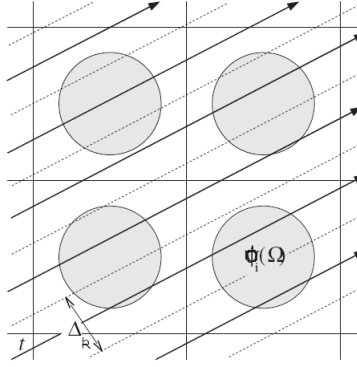


Figure 1.17 – Traçage pour le calcul du flux angulaire moyen à l'intérieur d'une région

Contrairement aux frontières des régions qui définissent de façon naturelle la discrétisation des caractéristiques permettant facilement d'appliquer les équations de bilan et de transmission, le découpage du domaine en région n'induit pas de discrétisation immédiate concernant la coordonnée transverse  $r_{\perp}$ . Il faut donc, pour chaque angle de la formule de quadrature, définir un maillage dans la direction transverse. L'ensemble des trajectoires de direction  $\vec{\Omega}$  et passant par le centre des mailles transverses est appelé traçage. Le traçage contient toutes les données géométriques nécessaires au solveur de flux.

#### 1.4.2.5 Traitement des résonances

Le module d'autoprotection AUTOP d'APOLLO2 a pour but d'évaluer les sections efficaces multigroupes des isotopes résonnants présents dans la géométrie étudiée pour les groupes énergétiques du maillage considéré couvrant le domaine des résonances, les sections obtenues seront alors des sections multigroupes autoprotégées. Ses données d'entrée sont d'une part des tabulations en fonction de la température et de la dilution des différentes sections effectives en milieu homogène et d'autre part des formules de quadrature. Le formalisme multigroupe bien qu'il décrive très finement le spectre ne suffit pas à décrire les multiples résonances des noyaux lourds [CRI-41]. Dans le domaine de ralentissement, il est donc nécessaire de faire appel à des sections efficaces multigroupes autoprotégées en établissant une équivalence entre le cas réel (hétérogène) et un cas homogène pour lequel les sections effectives ont été préalablement tabulées pour évaluer les taux de réactions à préserver. Lorsque ces taux de réaction sont connus, une deuxième équivalence est effectuée, l'équivalence multigroupe donnant les sections multigroupes les conservant. Les deux méthodes actuellement utilisées dans APOLLO2 [CRI-42] pour calculer les sections efficaces multigroupes autoprotégées définies pour tout isotope résonnant  $x$ , pour tout groupe résonnant  $g$  du maillage multigroupe et toute réaction  $\rho$ , par  $\sigma_{x,\rho}^g(\vec{r}) = \frac{\int_g \sigma_{x,\rho}(u') \phi(\vec{r}, u') du'}{\phi^g(\vec{r})}$  pour un nombre restreint de groupes énergétiques le

formalisme de Livolant-Jeanpierre [CRI-43] ; pour un nombre plus élevé de groupes énergétiques la méthode des sous-groupes [CRI-44] [CRI-45].

##### 1.4.2.5.1 Formalisme de Livolant-Jeanpierre

Le formalisme de Livolant-Jeanpierre [CRI-46] permet aussi bien de traiter les isotopes résonnants après résolution exacte d'un problème de ralentissement en milieu homogène infini puis résolution de ce problème à l'aide de modèles de l'opérateur de ralentissement lourd (NR-Narrow Resonance, ST-Statistique, WR-Wide Resonance et TR-Toute Résonance) dans le cas d'un milieu hétérogène.

- Equivalence Homogène / Hétérogène

Première étape de la méthode, l'équivalence avec un milieu homogène permet d'obtenir pour chaque groupe énergétique et chaque région d'autoprotection les taux de réaction dans la géométrie réelle. Sa mise en œuvre nécessite donc de connaître la structure fine du flux pour chacun de ces groupes et chacune de ces régions. Or, le domaine des résonances des isotopes lourds étant essentiellement régi par le phénomène de ralentissement élastique pur, on effectue le calcul d'autoprotection en supposant que le flux présent dans la définition des sections efficaces multigroupes autoprotégées est solution de l'équation de ralentissement pur, de résolution aisée en milieu homogène infini.

– Milieu homogène infini

Soit un mélange de noyaux lourds (indice 0) et de noyaux modérateurs (indice 1), l'équation du ralentissement pur s'écrit, du fait que le domaine de résonance des noyaux lourds est en dessous du domaine énergétique des fissions :

$$(\Sigma_{t0}(u) + \Sigma_{t1}(u))\phi(u) = \sum_x (R_{0x}\phi(u) + R_{1x}\phi(u)) \quad (1.12)$$

avec  $R_x$ , opérateur de ralentissement élastique résonnant défini par

$$R_x\phi(u) = \int_{u-\epsilon_0}^u \Sigma_{s,x'}(u' \rightarrow u)\phi(u')du'$$

Le formalisme de Livolant-Jeanpierre définit la factorisation du flux  $\phi = \varphi\chi$  introduisant le flux macroscopique défini par

$$\chi(u) = \frac{\sum_x R_{1x}\phi(u)}{\Sigma_s(u)} = \frac{R_1\phi(u)}{\Sigma_s(u)}$$

et la fonction de structure fine  $\varphi$ , la nouvelle inconnue du problème. Alors que le flux macroscopique  $\chi$  varie lentement avec la léthargie du fait de la lente variation des sections de diffusion des noyaux légers avec la léthargie et de la grandeur de l'intervalle d'intégration de l'opérateur de ralentissement, la fonction de structure fine possède une structure résonnante et varie très rapidement avec la léthargie. Pour résoudre (1.12), on fait « l'approximation de structure fine »  $R_0\phi(u) \approx \chi(u)R_0\varphi(u)$  consistant à découpler les structures macroscopiques et microscopiques du flux, justifiée de part la variation très lente de  $\chi$  avec la léthargie et l'étroitesse du domaine d'intégration de  $R_0$  (gain maximum en léthargie très faible pour un noyau lourd). Après simplification par le flux macroscopique  $\chi$ , on peut alors écrire (1.12) sous la forme simplifiée :

$$(\Sigma_{t0}(u) + \Sigma_{t1}(u))\varphi(u) = \sum_x (R_{0x}\varphi(u) + \Sigma_{s1}(u)) \quad (1.13)$$

En divisant (1.13) par la concentration  $N_0$  en noyaux modérateurs et en définissant la section de dilution par  $\sigma_e = \frac{\Sigma_{t1}}{N_0}$ , il vient :

$$(\tilde{\sigma}_{t0} + \sigma_e)\varphi(u) = \tilde{r}_0\varphi(u) + \gamma_e\sigma_e \quad (1.14)$$

avec  $\tilde{r}_0 = \frac{R_0(u)}{N_0}$ ,  $N_0$  étant la concentration de l'isotope résonnant et  $\gamma_e$ , paramètre mesurant le pouvoir d'absorption du modérateur. Notons que la section de dilution  $\sigma_e$  et le paramètre  $\gamma_e$  dépendent très faiblement de la léthargie pour un noyau modérateur. On obtient donc une équation dite de « structure fine » à deux variables,  $\sigma_e$  et  $\gamma_e$  et linéaire en  $\gamma_e$ . Ainsi, si  $\varphi(\sigma_e, \gamma_e)$  est solution de (1.14), la relation  $\varphi(\sigma_e, \gamma_e) = \gamma_e\varphi(\sigma_e, 1)$  est vérifiée d'où la possibilité de ne résoudre (1.14) que pour  $\gamma_e = 1$ . Cette résolution de (1.14) pour  $\gamma_e = 1$  est effectuée en amont du calcul APOLLO2 par des codes multigroupes (THEMIS, CALENDF) qui résolvent l'équation exacte de structure fine avec un maillage énergétique très fin. Sachant qu'une fois sa température fixée, un milieu homogène infini étant caractérisé par sa

dilution, des taux de réaction « exacts »  $T_{hom}$  dans chaque région d'autoprotection vont ainsi pouvoir être obtenus par interpolation en fonction de celle-ci. Grâce aux modèles NR, WR, ST et TR, on peut résoudre l'équation de structure fine et calculer ainsi grâce à des formules de quadrature des taux de réaction « approchés »  $T_{hom*}$  fonction de la section de dilution. Les modèles NR et WR découlent de la comparaison du gain de léthargie maximum par choc par rapport à la largeur de la résonance considérée tandis que les modèles ST et TR prennent pour hypothèse que dans le noyau de transfert, l'exponentielle peut être remplacée par une constante du fait de la faible valeur du gain en léthargie sur un noyau lourd.

- **Modèle NR (Narrow-Resonance)**

Ce modèle suppose que la largeur de la résonance est petite devant le gain maximum en léthargie donc dans la formule définissant l'opérateur de ralentissement élastique résonnant, on peut remplacer la section de diffusion à la léthargie  $u$  par la section potentielle et le flux par sa valeur constante hors résonance. L'équation de structure fine (1.14) s'écrit alors :

$$(\sigma_{t0} + \sigma_e(u))\varphi(u) = \sigma_p\varphi(\sigma_p) + \gamma_e\sigma_e \quad (1.15)$$

Comme  $\varphi(\sigma_p) = \gamma_e$ , il vient l'expression de la structure fine NR (flux de Bondarenko) :

$$\varphi^{NR}(u) = \gamma_e \frac{(\sigma_p + \sigma_e)}{\sigma_0(u) + \sigma_e} \quad (1.16)$$

Dans un groupe  $g$  donné, le taux d'absorption sera calculé grâce à une formule de quadrature de type  $\int_g \sigma_a(u)f[\sigma_t(u)]du = \sum_{i=1}^N \Delta u_g \sigma_{a_i} p_i f(\sigma_{t_i})$  avec  $(p_i, \sigma_{t_i}, \sigma_{a_i}) (1 \leq i \leq n)$ , tables de probabilités de  $\sigma_t$  avec pour partielle  $\sigma_a$ . Ce modèle, représentatif du ralentissement pour les hautes énergies est utilisé comme flux de mise en groupe dans le domaine non-résolu.

- **Modèle WR (Wide-Resonance)**

Le modèle WR correspond à l'approximation « Résonance large ». On considère que la résonance est beaucoup plus grande que l'intervalle de léthargie sur lequel agit l'opérateur de ralentissement. Sous cette hypothèse, l'équation de structure fine (1.14) devient :

$$(\sigma_{t0} + \sigma_e(u))\varphi(u) = \sigma_{s0}\varphi(u) + \gamma_e\sigma_e \quad (1.17)$$

d'où l'expression de la structure fine WR :

$$\varphi^{WR}(u) = \frac{\gamma_e\sigma_p}{\sigma_{a0}(u) + \sigma_e} \quad (1.18)$$

De même que précédemment, le taux d'absorption sera calculé par une formule de quadrature de type

$$\int_g \sigma_a(u)f[\sigma_a(u), \sigma_t(u)]du = \sum_{i=1}^I \Delta u_g p_i f(\sigma_{a_i}, \sigma_{t_i}) \quad (1.19)$$

Ce modèle est assez réaliste pour des énergies  $< 30$  eV et peut être appliqué pour l'autoprotection de la grande résonance de l' $^{238}\text{U}$  à 6.67 eV.

- **Modèle ST (Statistique)**

Le modèle ST suppose les résonances étroites, statistiquement distribuées dans le groupe énergétique  $g$  considéré et que leur espacement est faible par rapport au gain maximum en léthargie. On peut alors remplacer la moyenne du produit  $\sigma_{s0}$  sur l'intervalle de léthargie  $[u - \epsilon_0; u]$  par sa moyenne sur le groupe  $g$ . L'équation de structure fine (1.14) devient alors :

$$(\sigma_{0(u)} + \sigma_e(u))\varphi(u) = \langle \sigma_{s0}\varphi(u) \rangle_g + \gamma_e\sigma_e \quad (1.20)$$



En supposant l'homogénéisation effectuée sur le groupe  $g$  et en remplaçant  $\varphi$  par sa valeur tirée de (1.20), on obtient :

$$\langle \sigma_{s0} \varphi \rangle_g = \frac{1}{\Delta u_g} \int_g \sigma_{s0}(u') \frac{\langle \sigma_{s0} \varphi \rangle_g + \gamma_e \sigma_e}{\sigma_0(u') + \sigma_e} du' \quad (1.21)$$

d'où l'expression de la fonction de structure fine ST :

$$\varphi_{ST}(u) = \frac{\gamma_e \sigma_e}{1 - \frac{1}{\Delta u_g} \int_g \frac{\sigma_{s0}(u')}{\sigma_0(u') + \sigma_e} du'} \frac{1}{\sigma_0(u') + \sigma_e} \quad (1.22)$$

Après décomposition de l'intégrale apparaissant dans (1.22), le taux d'absorption sera calculé par une

formule de quadrature de type  $\int_g \sigma_a(u) f[\sigma_t(u)] du = \sum_{i=1}^N \Delta u_g \sigma_{a_i} p_i f(\sigma_{t_i})$ .

- **Modèle TR (Toute Résonance)**

Ce modèle approxime le noyau de ralentissement par la somme des taux de diffusion moyens par groupe  $y$  compris dans l'intervalle de léthargie  $[u - \epsilon_0; u]$ . Le noyau de ralentissement s'écrit alors :

$$r_0 \varphi(u) \approx \frac{1}{\epsilon_0} [(u_2(g') - u + \epsilon_0) \langle \sigma_{s0} \varphi \rangle'_g + \sum_{g''=g'+1}^{g-1} \Delta u_g \langle \sigma_{s0} \varphi \rangle''_{g''} + (u - u_1(g)) \langle \sigma_{s0} \varphi \rangle_g]$$

Ce qui peut se réécrire sous la forme

$$r^{TR}(u) \approx \sum_{g' \leq g} \frac{\Delta I(g', g)}{\Delta u_{g'}} \langle \sigma_{s0} \varphi \rangle'_g = \sum_{g' \leq g} \text{prop}(g', g) \langle \sigma_{s0} \varphi \rangle'_g \quad (1.23)$$

avec  $I(g', g)$  définissant les intervalles composant la partition de chaque groupe énergétique  $g$  du maillage,  $I(g', g) = u - g$  tel que :  $(u - \epsilon_0) \leq g' \leq g$  et  $\Delta I(g', g)$  la largeur de ces intervalles. Le terme  $\text{prop}(g', g)$  est l'approximation de la probabilité de transfert d'un neutron de  $g'$  vers  $g$ . Le flux TR s'exprime alors :

$$\varphi^{TR}(u) = \frac{1}{1 - \frac{\text{prop}(g, g)}{\Delta u_g \int_g \frac{\sigma_{s0}(u')}{\sigma_{t0}(u') + \sigma_e} du'}} \frac{k_g + \gamma_e \sigma_e}{\sigma_{t0}(u) + \sigma_e} \quad (1.24)$$

avec  $k_g = \sum_{g' \leq g} \text{prop}(g', g) \langle \sigma_{s0} \varphi \rangle'_g$ .

– Milieu hétérogène

En géométrie hétérogène, l'équation matricielle du ralentissement élastique pur s'écrit :

$$\Sigma_t(u) V \phi(u) = p(u) V [R_0 \phi(u) + R_1 \phi(u)] \quad (1.25)$$

avec

- $\Sigma_t$  : matrice diagonale des sections efficaces totales ;
- $V$  : matrice diagonale des volumes des régions de calcul ;
- $P$  : matrice des probabilités de collision ;
- $R_0$  et  $R_1$  : opérateurs de ralentissement des noyaux lourds et légers. Le formalisme de Livolant-Jeanpierre permet d'écrire, dans chaque région de calcul  $j$  et en supposant le flux macroscopique  $\chi$  identique en tout point de l'espace :

$$R_0 \phi_j(u) = \chi_j(u) R_0 \varphi_j(u), \chi_j(u) = \chi_i(u), \forall i, j \quad (1.26)$$

L'équation (1.25) peut alors se mettre sous la forme :

$$\Sigma_{ti}(u) V_i \varphi_i(u) = \sum_j P_{ij}(u) [V_j R_0 \varphi_j(u) + \Sigma_{s1,j}(u)] \quad (1.27)$$

avec  $\Sigma_{s1,j}$  section de diffusion des noyaux légers. Regroupons à présent toutes les régions de calcul  $i$  en une seule région d'autoprotection, caractérisée par la présence des mêmes mélanges résonnants et décomposons le second membre de (1.27), le terme  $R_0\varphi_j$  étant nul en dehors du domaine résonnant, donc en dehors des régions  $\beta$  d'autoprotection le fractionnant. Il vient,

$$\sum \Sigma_i(u) V_i \varphi_i(u) = \sum_{i \in \beta} \sum_{\beta} \sum_{j \in \beta} P_{ij}(u) V_j R_{0j} \varphi_j(u) + \sum_{i \in \alpha} \sum_j P_{ij}(u) V_j \Sigma_{s1,j}(u) \quad (1.28)$$

Sachant que l'isotope résonnant traité possède les mêmes sections microscopiques donc le même opérateur de ralentissement microscopique dans toutes les régions de calcul formant la région d'autoprotection  $\alpha$  et en remplaçant le flux de structure fine dans les régions de calcul  $i$  par le flux moyen dans la région  $\alpha$ ,  $\varphi_\alpha$ , on obtient :

$$\sum \Sigma_i(u) V_i \varphi_{0\alpha}(u) = \sum_{i \in \beta} \sum_{\beta} \sum_{j \in \beta} P_{ij}(u) V_j N_{0j} r_{0\beta} \varphi_{0\beta}(u) + \sum_{i \in \alpha} \sum_j P_{ij}(u) V_j \Sigma_{s1,j}(u) \quad (1.29)$$

et en définissant la matrice  $C(u)$  et le vecteur  $S(u)$  respectivement par :  $C_{\alpha\beta}(u) = \frac{\sum_{i \in \alpha} \sum_{j \in \beta} P_{ij}(u) V_j N_{0j}}{\sum_{i \in \alpha} \Sigma_i V_i}$

et  $C_\alpha(u) = \frac{\sum_{i \in \alpha} \sum_j P_{ij}(u) V_j \Sigma_{s1,j}(u)}{\sum_{i \in \alpha} \Sigma_i V_i}$  l'équation (1.29) peut finalement s'écrire dans chaque région d'autoprotection sous la forme :

$$\varphi_0(u) = C(u) r_0 \varphi_0(u) + S(u) \quad (1.30)$$

Cette équation est la base du formalisme d'autoprotection, cependant, elle est difficile à résoudre car couplée en espace et en énergie et on peut avoir à traiter un cas de mélange d'isotopes résonnants.

Le couplage en espace peut être traité de deux manières, soit par la méthode PIC consistant en une diagonalisation artificielle de la matrice  $C(u)$ , soit par la méthode de la matrice de dilution [CRI-47], soit (ce qui est retenu dans APOLLO2) par la méthode directe qui calcule par un produit matrice-vecteur le flux en substituant dans (1.30)  $r_0$  par sa valeur approchée issue des différents modèles NR, WR, ST et TR. Le couplage en énergie est traité grâce à ces mêmes modèles. Concernant le traitement des mélanges, il existe deux méthodes : soit chaque noyau résonnant est traité individuellement, les noyaux résonnants non-traités étant considérés comme des noyaux modérateurs, soit le mélange est directement traité comme une seule entité résonnante. Le calcul s'effectue alors par couplage ou itération sur les groupes énergétiques. Dans le premier cas, à chacune des itérations, les autres noyaux résonnants sont pris en compte soit avec leurs sections autoprotégées si celles-ci ont été calculées lors de l'itération précédente soit avec leurs sections non-autoprotégées dans le cas contraire. Cependant, cette méthode est inadaptée lorsque deux isotopes résonnants possèdent des résonances à l'intérieur d'un même groupe : il y a interférence entre résonances. Ainsi, on peut obtenir dans chaque région d'autoprotection les taux de réaction correspondant à ce flux ponctuel en léthargie calculé de façon approchée en géométrie hétérogène. Ces taux seront notés  $T_{a*}$ . A partir de ces taux  $T_{a*}$ , on peut remonter à la valeur de la dilution  $\sigma_e$  à employer dans le calcul des taux de référence en milieu homogène infini  $T_{hom}$  en réalisant une équivalence entre ces taux  $T_{a*}$  approchés en milieu hétérogènes et les taux approchés en géométrie homogène  $T_{hom*}$  [CRI-42] (Figure 1.18).

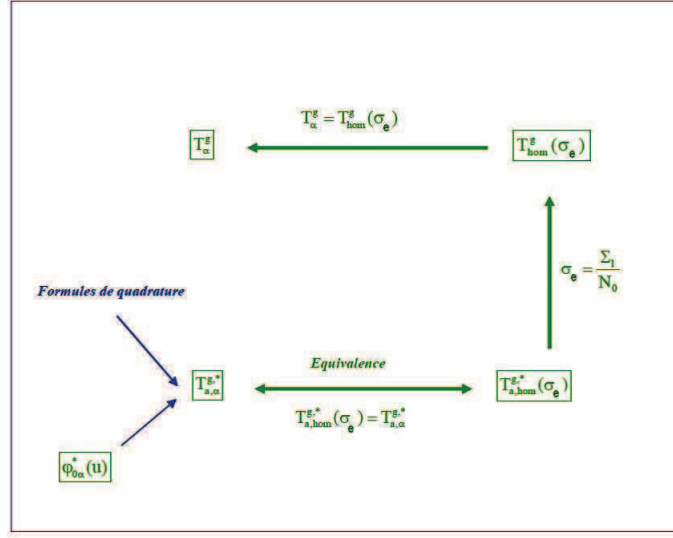


Figure 1.18 – Principe d’homogénéisation dans le code de transport APOLLO2

Cette deuxième étape a pour but de calculer, pour chaque isotope résonnant  $x$  et dans le groupe énergétique  $g$ , pour toutes les réactions et toutes les régions d’autoprotection  $\alpha$ , les sections multigroupes qui garantissent la conservation des taux de réaction exacts issus de l’étape d’homogénéisation, soit le système d’ordre  $\alpha$  :

$$T_{\rho,x,\alpha}^g = \Delta u^g \sigma_{\rho,x,\alpha}^g \varphi_{0\alpha}^g \quad (1.31)$$

$\varphi_{0\alpha}^g$ , le flux multigroupe moyen par unité de léthargie dans le groupe  $g$  et la région d’autoprotection  $\alpha$  dépend de la distribution des sections efficaces totales dans toutes les régions d’autoprotection. Or, les sections efficaces totales des isotopes non résonnants sont connues donc  $\varphi_{0\alpha}^g$  ne dépend que de celle de l’isotope résonnant  $x$ . On peut alors ne résoudre (1.31) que pour la section efficace totale :

$$T_{x,\alpha}^g = \Delta u^g \sigma_{x,\alpha}^g \varphi_{0\alpha}^g(\vec{\sigma}_x^g) \quad (1.32)$$

avec  $\vec{\sigma}_x^g$  le vecteur de composante  $\alpha$  égale à la section efficace totale de  $x$  dans la région  $\alpha$  et le groupe  $g$ . Le flux de structure fine obtenu alors permet d’accéder aux sections efficaces pour toutes les autres réactions. Ce flux  $\varphi_{0\alpha}^g(\sigma_x^g)$  est solution de l’équation de structure fine en géométrie hétérogène intégrée sur un groupe énergétique  $g$ . Le système (1.32) se résout alors de la façon suivante en notant  $n$  l’indice d’itération,  $\sigma_x^\alpha$  la section efficace microscopique totale de l’isotope  $x$ ,  $N_{ix}$  sa concentration et  $\Sigma_{1x}^g$  la section efficace totale des isotopes modérateurs de la région  $i$  [CRI-42] (Figure 1.19) :

$$\begin{aligned}
 & \Phi_{0\alpha}^{g,(n)} \\
 & \downarrow \\
 & \sigma_{x,\alpha}^{g,(n)} = \frac{T_{x,\alpha}^g}{\Delta u^g \Phi_{0\alpha}^{g,(n)}} \\
 & \downarrow \\
 & \Sigma_i^{g,(n)} = N_{xi} \sigma_{x,\alpha}^{g,(n)} + \Sigma_{li}^g \text{ pour } i \in \alpha \\
 & \downarrow \\
 & \Phi_{0\alpha}^{g,(n+1)}
 \end{aligned}$$

**Figure 1.19 – Obtention par itération des sections efficaces autoprotégées multigroupes**

De part la non prise en compte des réactions inélastiques discrètes ainsi que de l'anisotropie du transfert, le domaine énergétique de cette méthode est réduit. De plus, elle n'est adaptée que pour des mélanges contenant des isotopes très diffusants non-résonnants et des isotopes lourds résonnants du fait de l'approximation sur l'opérateur de ralentissement  $R_0\Phi$ .

En résumé, l'organigramme de la méthode est donné par la Figure 1.20 [CRI-43] :

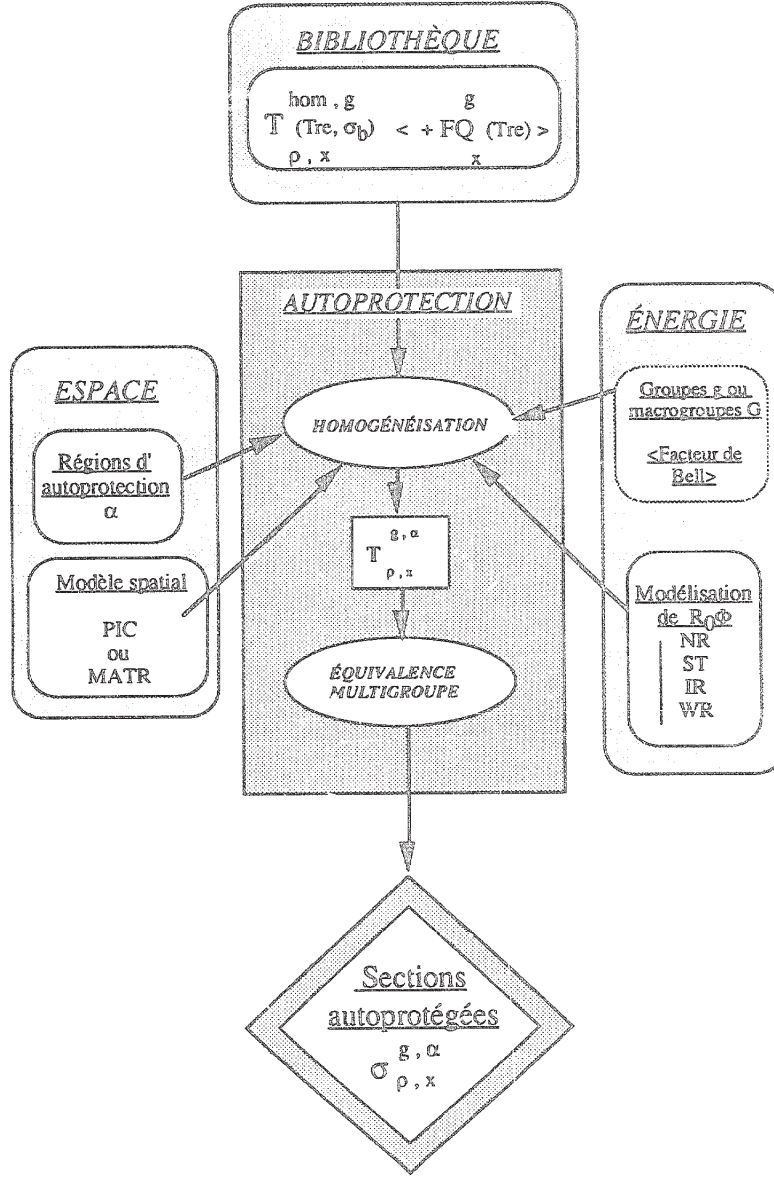


Figure 1.20 – Implémentation de la méthode de Livolant-Jeanpierre dans APOLLO2

#### 1.4.2.5.2 Méthode des sous-groupes

La méthode des sous-groupes, formalisée par M. Coste-Delclaux [CRI-44] puis introduite et validée par S. Mengelle [CRI-45], est basée sur l'égalité entre la moyenne de deux fonctions sur un groupe  $g$  et le produit des moyennes sur ce groupe, soit en considérant une fonction  $f[\sigma(u)]$  et la densité de collision  $\tau[\sigma(u)]$  :

$$\langle f[\sigma_i(u)]\tau[\sigma_i(u)] \rangle_g = \langle f[\sigma_i(u)] \rangle_g \langle \tau[\sigma_i(u)] \rangle_g \quad (1.33)$$

$$\langle \sigma_x f[\sigma_i(u)]\tau[\sigma_i(u)] \rangle_g = \langle \sigma_x f[\sigma_i(u)] \rangle_g \langle \tau[\sigma_i(u)] \rangle_g \quad (1.34)$$

Elle est applicable lorsque les structures résonnantes des sections efficaces sont indépendantes des sources, ce qui est a priori vérifié dans le domaine non-résolu, et si la finesse du maillage énergétique permet de considérer la densité de collision comme constante pour chacun des groupes. Cette

deuxième hypothèse permet son application dans le domaine résonnant et du fait de cette finesse de maillage (12000 groupes), effectuer une équivalence multigroupe n'est pas nécessaire. De plus, elle est adaptée au traitement de n'importe quel isotope résonnant et des domaines du ralentissement inélastique car elle ne fait aucune hypothèse sur la physique du ralentissement des isotopes à autoprotéger. Le calcul des sections efficaces multigroupes autoprotégées s'effectue de la manière suivante : l'équation matricielle du ralentissement sous forme intégrale s'écrit :

$$\Sigma_{t,i}(u)V_i\phi_i(u) = \sum_j P_{ij}(u)[R\phi_j(u) + S_j(u)] \quad (1.35)$$

avec R matrice diagonale des opérateurs élastiques et inélastiques de ralentissement ; S source externe uniforme en espace, située dans le premier groupe énergétique à autoprotéger et prise égale à 1. La densité de collision dans la région j est définie par :

$$\tau_{R_{0x}}\phi_j + R_{1x}\phi_j + S_j \quad (1.36)$$

Le flux dans la région i s'exprime par :

$$\phi_i(u) = \frac{\sum_j P_{ij}(u)V_j\tau_j(u)}{\Sigma_i(u)V_i} \quad (1.37)$$

donc, d'après (1.33) et (1.34), le flux moyen  $\langle\phi_i\rangle_g$  et le taux de réaction moyen pour la réaction  $\rho$  sur le groupe peuvent s'écrire respectivement :

$$\langle\phi_i(u)\rangle_g = \sum_j \frac{V_j}{V_i} \langle \frac{P_{ij}(u)}{\Sigma_i(u)} \rangle_g \langle\tau_j(u)\rangle_g \quad (1.38)$$

$$\langle\sigma_{\rho,x}\phi_i(u)\rangle_g = \sum_j \frac{V_j}{V_i} \langle \frac{\sigma_{\rho,x}P_{ij}(u)}{\Sigma_i(u)} \rangle_g \langle\tau_j(u)\rangle_g \quad (1.39)$$

Pour la réaction  $\rho$ , la section multigroupe autoprotégée dans le groupe g, dans la région i, s'exprime donc par :

$$\sigma_{i,x,\rho,g}(u) = \frac{\langle\sigma_{\rho,x}\phi_i(u)\rangle_g}{\langle\phi_i\rangle_g} \quad (1.40)$$

$$\sigma_{i,x,\rho,g}(u) = \frac{\sum_j \frac{V_j}{V_i} \langle \frac{\sigma_{\rho,x}P_{ij}(u)}{\Sigma_i(u)} \rangle_g \langle\tau_j(u)\rangle_g}{\sum_j \frac{V_j}{V_i} \langle \frac{P_{ij}(u)}{\Sigma_i(u)} \rangle_g \langle\tau_j(u)\rangle_g} \quad (1.41)$$

Les termes  $\langle \frac{P_{ij}(u)}{\Sigma_i(u)} \rangle_g$  et  $\langle \frac{\sigma_{\rho,x}P_{ij}(u)}{\Sigma_i(u)} \rangle_g$  sont calculés grâce à des formules de quadrature. Pour calculer la densité moyenne de collision  $\langle\tau_j(u)\rangle_g$ , inconnue de la méthode, on revient à sa définition :

$$\langle\tau_j(u)\rangle_g = \frac{1}{\Delta u_g} \int_g R_{0x}\phi_j(u)du + \frac{1}{\Delta u_g} \int_g R_{1x}\phi_j(u)du + \langle S_j \rangle_g \quad (1.42)$$

L'opérateur de ralentissement multigroupe s'écrivant

$$\frac{1}{\Delta u_g} \int_g R_{0x}\phi_j(u)du = \frac{1}{\Delta u_g} \sum_{g' \leq g} \int_g du \int_{g'} p_{0x}(u' \rightarrow u) \Sigma_{s,x,0}(u') \phi_j(u') du' \quad (1.43)$$



et le maillage énergétique considéré étant très fin, on peut approximer  $p_{0x}(u' \rightarrow u)$ , la probabilité de transfert des noyaux lourds par celle calculée en dilution infinie, ce qui se traduit par (1.44) :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\Delta u_g} \int_g R_{0x} \phi_j(u) du &\approx \frac{1}{\Delta u_g} \sum_{g' < g} p_{0,x,\infty}(g, g') \int_{g'} \Sigma_{s,x,0}(u') \phi_j(u') du' \\ &= \frac{1}{\Delta u_g} \sum_{g' \leq g} p_{0,x,\infty}(g, g') N_x \langle \sigma_{s,x,0} \phi_j \rangle_{g'} \Delta u_{g'} \end{aligned} \quad (1.44)$$

De même pour les isotopes non résonnants, sachant que la section de diffusion des isotopes modérateurs peut être considérée comme constante :

$$\frac{1}{\Delta u_g} \int_g R_{1x} \phi_j(u) du = \frac{1}{\Delta u_g} \sum_{g' \leq g} \Sigma_1(g, g') \langle \phi_j \rangle_{g'} \Delta u_{g'} \quad (1.45)$$

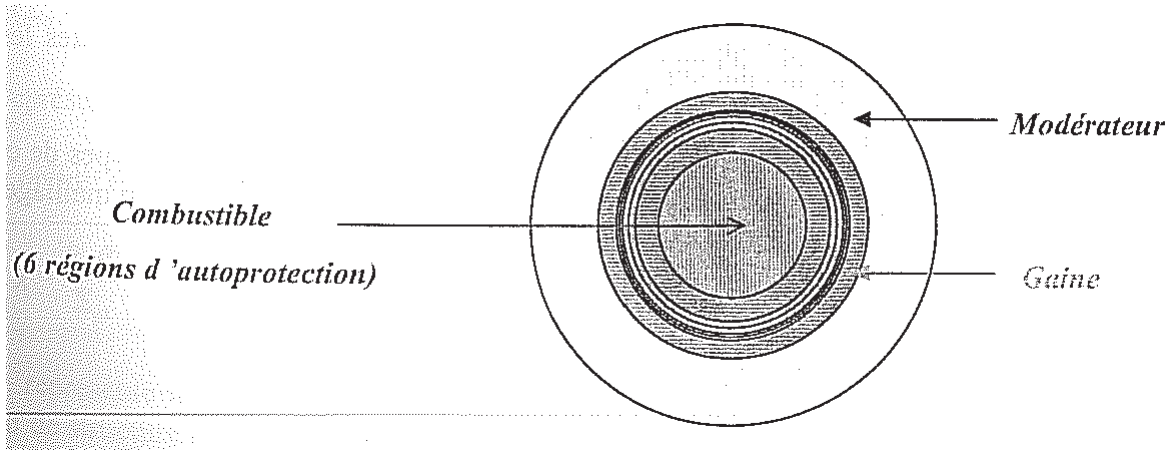
Le système à résoudre est alors :

$$\langle \tau_j(u) \rangle_g = \frac{1}{\Delta u_g} \sum_{g' \leq g} p_{0,x,\infty}(g, g') N_x \langle \sigma_{s,x,0} \phi_j \rangle_{g'} \Delta u_{g'} + \frac{1}{\Delta u_g \sum_{g' \leq g} \Sigma_1(g, g') \langle \phi_j \rangle_g} \Delta u_{g'} + \langle S_j \rangle_g \quad (1.46)$$

et peut se réécrire grâce à (1.33) et (1.34) sous la forme (1.46) :

$$\langle \tau_j \rangle_g = \sum_{g' \leq g} p_{0,x,\infty}(g, g') N_x \sum_j \frac{V_j}{V_i} \langle \frac{\sigma_{\rho,x} P_{ij}}{\Sigma_i} \rangle_{g'} \langle \tau_j \rangle_{g'} \frac{\Delta u_{g'}}{\Delta u_g} + \sum_{g' \leq g} \Sigma_1(g, g') \sum_j \frac{V_j}{V_i} \langle \frac{P_{ij}}{\Sigma_i} \rangle_g \langle \tau_j \rangle_{g'} \frac{\Delta u_{g'}}{\Delta u_g} + \langle S_j \rangle_g \quad (1.47)$$

L'obtention des valeurs moyennes des densités de collision s'effectue par inversion dans chaque groupe énergétique de ce système (1.46) triangulaire en énergie et linéaire en espace. La limite de cette méthode est la non prise en compte des mélanges d'isotopes résonnants et du profil de température. Notons que les intégrales en léthargies sont calculées à l'aide de la méthode de Gauss en utilisant les tables de probabilités aussi bien pour la méthode de Livolant-Jeanpierre que pour celle des sous-groupes. Une discrétisation en espace est effectuée car les sections autoprotégées dépendent de la variable d'espace. Cela conduit à introduire la notion de « région d'autoprotection » (Figure 1.21), définie comme un ensemble de régions de calcul situées dans un ou plusieurs milieux dans lesquels les mélanges d'isotopes résonnants sont identiques. Pour chaque région, chaque isotope, chaque type de réaction et chaque groupe d'énergie du domaine résonnant, on dispose d'une section efficace autoprotégée. Ce calcul est effectué en considérant un flux moyen de pondération par région d'autoprotection. Une fois les sections efficaces multigroupes calculées en fin du calcul d'autoprotection pour chaque isotope résonnant, la résolution de l'équation de Boltzmann s'effectue en remplaçant dans chaque région d'autoprotection l'isotope initial non autoprotégé par l'isotope autoprotégé calculé dans cette même région.



**Figure 1.21 – Exemple de discrétisation d'une cellule pour le calcul d'autoprotection**

On remarque Figure 1.21 la description plus raffinée du combustible, due en grande partie à la présence de  $^{238}\text{U}$  et à la production de  $^{239}\text{Pu}$ .

Pour traiter le problème des interférences entre résonnances, APOLLO2 utilise la méthode des tables de probabilités. Cette méthode de description de la variation des sections efficaces date des années 70 (Nicolaev et Khokhlov, 1969) [CRI-48], (Nicolaev, 1970) [CRI-49], (Cullen, 1974) [CRI-50], (Cullen et Pomraning, 1980)[CRI-51] puis a été généralisée par Pierre Ribon (Ribon et Maillard, 1986) [CRI-52] en se basant sur la théorie des moments et la quadrature de Gauss. A l'intérieur d'un groupe énergétique donné, une table de probabilité d'ordre  $n$  décrit par  $n$  couples  $(\sigma_i, p_i)$  associant une valeur correspondant à un palier atteint par la section efficace à sa probabilité d'occurrence, la variation des sections efficaces  $\sigma(E)$  (Figure 1.22). Cette probabilité s'exprime par

$$p_i = \frac{1}{\Delta E} \int_{E_{inf}}^{E_{sup}} f_i[\sigma(E)] dE \quad (1.48)$$

avec  $f_i[\sigma(E)] = 1$  si  $s_{i-1} < \sigma(E) < s_i$ , 0 sinon.

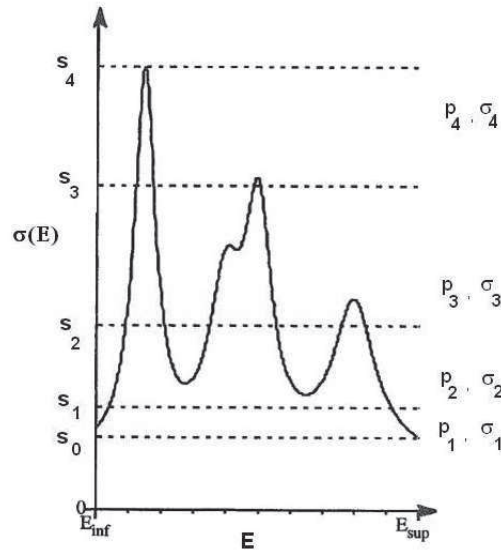


Figure 1.22 – Visualisation du principe d'une table de probabilité

La valeur  $\sigma_i$  peut être définie de différentes manières comme par exemple par sa médiane dans l'intervalle  $[s_{i-1}, s_i]$ , sa valeur moyenne  $\sigma_i = \frac{1}{\Delta E} \int_{E_{inf}}^{E_{sup}} \sigma(E) f_i[\sigma(E)] dE$  ou des points de quadrature de Gauss. Pour décrire les fluctuations des sections efficaces partielles  $\sigma_{p,i}$  d'un noyau, un correspondant pour celles-ci est associé à chaque palier de la section efficace totale  $\sigma_{t,i}$  ce qui fait d'une table de probabilité d'ordre  $n$  sur un groupe  $g$  un  $n$ -uplet de la forme  $(p_i, \sigma_{t,i}, \sigma_{p1,i}, \sigma_{p2,i}, \dots, \sigma_{pj,i})_{i=1,n}$ .

### 1.4.3 Méthode probabiliste Monte-Carlo

La méthode probabiliste de Monte-Carlo [CRI-2] consiste en une simulation exacte d'un nombre suffisant d'« histoires » de particules (suites d'interactions subies par ces particules de la naissance à la disparition) qui offre la possibilité de remonter jusqu'aux grandeurs physiques d'intérêt à l'aide d'estimateurs (opérateurs permettant de remonter à une valeur physique) : flux, courant, taux de réaction, débit équivalent de dose, dépôt d'énergie, énergie de recul et, ce qui nous intéressera plus particulièrement dans le cadre de notre étude, facteur de multiplication effectif. Nous constatons d'ores et déjà que la nécessité de simuler un grand nombre d'histoires pour obtenir la convergence du calcul signifie que le temps de calcul en sera affecté. C'est l'inconvénient majeur des codes de calcul probabilistes, néanmoins plus précis car ne faisant ni appel à des approximations géométriques, ni à des modèles d'autoprotection, les sections efficaces utilisées étant ponctuelles en énergie. La méthode de Monte-Carlo se base sur le principe que le processus de propagation des neutrons dans la matière est de type Markovien, ce qui implique que l'état  $i$  de la particule est indépendant de son état antérieur  $i-1$ . Pour réaliser une simulation, la construction du processus stochastique est la suivante : à chaque événement, un nombre aléatoire, choisi selon des densités de probabilités conformes aux lois physiques régissant l'interaction neutron-matière et aux caractéristiques physiques de la situation étudiée (spectre en énergie, distributions spatiale et angulaire) est associé. Lors de chaque simulation, on répète l'histoire de  $N_1$  lots composés de  $N_2$  particules et appelés « batch ». A partir des estimateurs  $W$ , les grandeurs physiques recherchées  $X$  sont déduites à l'aide d'une moyenne sur  $N$  particules avec  $K$  le nombre total

de collisions subies par la n-ième particule

$$X_N = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \sum_{k=1}^{K(n)} W(x_{n,k})$$

et les variances associées à ces grandeurs physiques sont approchées par :

$$\sigma_{X_n}^2 \approx \frac{1}{N(N-1)} \sum_{n=1}^N \sum_{k=1}^{K(n)} [X(x_{n,k}) - X_N]^2$$

Les trajectoires des différentes particules étant indépendantes les unes des autres, la loi des grands nombres permet d'affirmer :

$$\lim_{N \rightarrow \infty} X_N = X$$

et le théorème central-limite que  $X_N$  suit une répartition gaussienne autour de  $X$ , vraie valeur, si la variance  $\sigma_{X_N}^2$  qui lui est associée est finie. La Figure 1.23 résume le principe de la méthode.

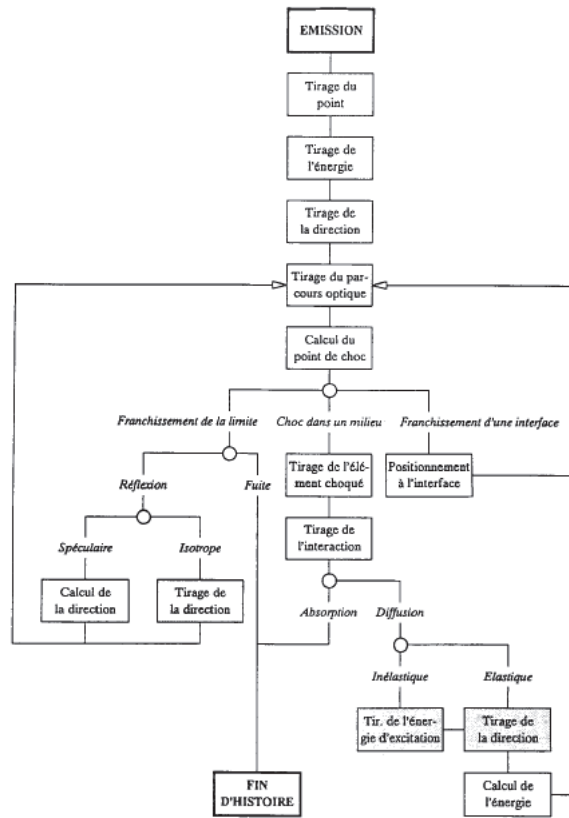


Figure 1.23 – Principe de la méthode probabiliste de Monte-Carlo

## 1.5 Calcul de bilan matière en et hors réacteur

Les concentrations de ces différents noyaux à n'importe quel instant de l'irradiation et du refroidissement qui précède l'irradiation sont régies par des équations appelées équations généralisées de Bateman.

### 1.5.1 Sous irradiation

L'équation généralisée de Bateman pour un noyau  $i$  en phase d'irradiation s'écrit :

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = B_i + \sum_{j=1}^{i-1} C_{ij}N_j(t) - C_{ii}N_i(t)$$

En notant :  $B_i = N_f \sigma_f \Phi Y_{fi}$  terme de production de l'élément  $i$  par fission ;

$C_{ij} = \lambda_{ij} + \sigma_{ij}\Phi$ ,  $i \neq j$ , production d'élément  $i$  par la décroissance des éléments  $j$ , ou par réaction neutronique sur les éléments  $j$  ;

$C_{ii} = \lambda_i + \sigma_i\Phi$ , disparition de l'élément  $i$  par décroissance radioactive ou par absorption neutronique.

$N_f$  : nombre de noyaux fissiles.

$\sigma_f$  : section efficace de fission.

$\Phi$  : flux neutronique.

$Y_{fi}$  : rendement de fission de l'élément  $i$ .

$\lambda_{ij}$  : constante de décroissance radioactive de l'élément j vers l'élément i.

$\sigma_{ij}$  : section efficace de la réaction j vers i.

$\lambda_i$  : constante de décroissance radioactive de l'élément i.

$\sigma_i$  : section efficace d'absorption de l'élément i.

La solution générale de cette équation est une série exponentielle,  $N_i(t)$  tendant vers une valeur de saturation  $N_i^s$  quand t tend vers l'infini. Cette solution s'écrit :

$$N_i(t) = N_i^s - \sum_{k=1}^i P_{ik} \cdot e^{-C_{kk} \cdot t}$$

avec

$$N_i^s = \frac{1}{C_{ii}} (B_i + \sum_{j=1}^{i-1} C_{ij} N_j^s), C_{ii} \neq 0$$

$$P_{ik} = \frac{1}{C_{ii} - C_{kk}} \sum_{j=k}^{i-1} C_{ij} \cdot P_{kj}, 1 \leq k \leq i-1$$

$$P_{ii} = N_i^s - N_i(0) - \sum_{k=1}^{i-1} P_{ik}$$

### 1.5.2 Hors flux

Hors flux (en phase de refroidissement), l'équation généralisée de Bateman s'écrit :

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \sum_{j=1}^{i-1} \lambda_{ij} N_j(t) - \lambda_i N_i(t)$$

Elle permet de calculer le nombre de noyau de l'espèce i à n'importe quel temps de refroidissement.

Cela revient à considérer la chaîne d'évolution suivante :  $1 \rightarrow 2 \rightarrow 3 \rightarrow \dots (i-2) \rightarrow (i-1) \rightarrow i$

$\lambda_1 \rightarrow \lambda_2 \rightarrow \lambda_3 \rightarrow \dots \rightarrow \lambda_{i-2} \rightarrow \lambda_{i-1} \rightarrow \lambda_i$ . La solution de cette équation est donnée par :

$$N_i = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \dots \lambda_{i-1} \cdot N_{1,0} \left[ \sum_{k=1}^i \frac{e^{-\lambda_k t}}{\prod_{j=1, j \neq k}^i (\lambda_j - \lambda_k)} \right]$$

## Contexte physique des études de sûreté-criticité : Bibliographie

- [CRI-1] *Guide d'analyse : les risques de criticité et leur prévention dans les usines et les laboratoires*, Rapport IRSN DSU/SEC/T 2010-105 Ind A, 2010
- [CRI-2] P. REUSS, *Précis de neutronique*, collection Génie Atomique, EDP Sciences, 2003
- [CRI-3] A. SANTAMARINA ET AL., *JEFF-3.1.1 nuclear data library*, JEFF report 22, Validation results from JEF-2.2 to JEFF-3.1.1, OECD/NEA, 2009
- [CRI-4] J.L BASDEVANT, J. RICH, M. SPIRO, *Energie Nucléaire*, Editions de l'Ecole Polytechnique, 2006
- [CRI-5] P. REUSS, *Eléments de neutronique*, collection enseignement INSTN/CEA, 1986
- [CRI-6] N. HFAIEDH, *Nouvelle méthodologie de calcul de l'absorption résonnante*, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 2006
- [CRI-7] F. GUNSING, O. BOULAND, L. TASSAN-GOT, *L'élaboration des données nucléaires et leur validation : les mesures fondamentales*, SFEN, 3/12/2007
- [CRI-8] F. GUNSING, *La mesure des sections efficaces : les techniques expérimentales et l'analyse des données*, in Clés CEA n° 45, p16-21, 2001
- [CRI-9] P. FOUGERAS, D. RIPPET, *L'apport des maquettes critiques dans la simulation des réacteurs nucléaires*, in Clés CEA, n° 47, p68-69, 2002-2003
- [CRI-10] A. SANTAMARINA, *From integral experiments to nuclear data improvement*, Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, April 22 to 27, 2007
- [CRI-11] H. TELLIER, Communication CEA, 1981
- [CRI-12] K. SHIBATA, *Present status of JENDL4*, in JAEA-Conf 2009-004, p13-18, 2009
- [CRI-13] M. COSTE-DELCLAUX, C. JOUANNE, J.C SUBLET, *L'élaboration des données nucléaires et leur validation : les outils de traitement et les bibliothèques d'application pour la physique des réacteurs*, SFEN, 3/12/2007
- [CRI-14] C. DE SAINT-JEAN ET AL., *Status of CONRAD, a nuclear reaction analysis tool*, Proceedings of Int Conf on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, 22-27 April, 2007
- [CRI-15] M.C. MOXON, *REFIT, a least square Fitting Program for Resonance Analysis of Neutron Transmission and Capture Data*, Technical report, AEA Industrial Technology, Harwell Laboratory, AEA-InTec-0470, 1991
- [CRI-16] P. BLAISE, E. FORT, Communication CEA, 1999
- [CRI-17] RAYNAL, J., *Coupled Channel Calculations and Computer Code ECIS*, published in "Workshop on Applied Nuclear Theory and Nuclear Model Calculations for Nuclear Technology Applications", Trieste, Italy, Feb. 15-March 18, 1988
- [CRI-18] A.J KONING, S. HILAIRE, M.C DUIJVESTIJN, *TALYS-1.0*, Proceedings of Int Conf on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, 22-27 April, 2007
- [CRI-19] B. HABERT, *Estimation des incertitudes dans l'évaluation des sections efficaces de réactions nucléaires*, thèse de doctorat, Institut polytechnique de Grenoble, 2009
- [CRI-20] A. SANTAMARINA ET AL., *JEF-2.2 Nuclear Data Statistical Adjustment Using Post-Irradiation Experiments*, Proc of Int Conf PHYSOR 2004, The Physics of Fuels Cycles and Advanced Nuclear Reactors Systems, Chicago, USA), April 2004
- [CRI-21] *The JEF2-2 Nuclear Data Library*, JEFF Report 17, OECD/NEA, 2000
- [CRI-22] G. NOGUERE ET AL., *Thermal and Resonance Range : examples of recent evaluation for JEFF*, GEDEPEON, NEA, Paris, France, November 29-30, 2010
- [CRI-23] A. SANTAMARINA, *The JEFF-3.1.1 library for accurate criticality-safety calculations*, Proceedings of Int Conf ICNC, Edinburgh, UK, 19-22 September, 2011
- [CRI-24] A. HEBERT, A.SANTAMARINA, *Refinement of the Santamarina-Hfaiedh energy mesh bet-*



- ween 22.5 ev et 11.4 kev, Proc of Int Conf PHYSOR 2008, Interlaken, Switzerland, September 14-19, 2008
- [CRI-25] A. HEBERT, *Development of the subgroup projection method for resonance self-shielding calculations*, in Nuclear Science and Engineering, 162 :56-75, 2009
- [CRI-26] P BELLIER & al., *APOLLO2.5 : notice théorique*, SERMA/LENR-RT/99-2719/A, 2002
- [CRI-27] R.E MACFARLANE, A.C KAHLER, *Methods for processing ENDF/B-II with NJOY*, Nuclear Data Sheets 111 2739-2890, Elsevier, 2010
- [CRI-28] J.C SUBLET ET AL., *Un code de traitement des données nucléaires basé sur les tables de probabilité CALENDF-2001* in Journal of Nuclear Science and Technology , 2001
- [CRI-29] M. COSTE-DELCLAUX, *GALILEE, a nuclear data processing for transport, depletion and shielding codes*, Proc of Int Conf PHYSOR 2008, Interlaken, Switzerland, September 14-19, 2008
- [CRI-30] R. SANCHEZ ET AL., *APOLLO2 year 2010*, in Nuclear engineering and technology, vol42, n°5, p 474-499, 2010
- [CRI-31] A. SANTAMARINA, C. COLLIGNON, C. GARAT, *French calculation Schemes for Light Water Reactor Analysis*, Proc Int Conf on the Physics of Fuel Cycles and Advanced Nuclear Systems, PHYSOR 2004, Chicago, USA, April 2004
- [CRI-32] E.E LEWIS, W.F MILLER, *Computational methods of neutron transport*, Wiley-interscience publication, John Wiley & Sons, 1984
- [CRI-33] V.S VLADIMIROV, Thèse de doctorat, V.A Stecklova Mathematics Institute, 1959
- [CRI-34] J.R ASKEW, *A characteristics formulation of the neutron transport equation in complicated geometries*, Report AAEW-M-1108, United Kingdom Atomic Energy Establishment, Winfried, 1972
- [CRI-35] R. LE TELLIER, *Développement de la méthode des caractéristiques pour le calcul des réseaux*, Thèse de doctorat, Université de Montréal, 2006
- [CRI-36] M. J HALSHALL, *CACTUS, a characteristics solution to the neutron transport equation in complicated geometries*, Report AAEW-R-1291, United Kingdom Atomic Energy Establishment, Winfried, 1980
- [CRI-37] J. RHODES, K. SMITH, D. LEE, *CASMO-5 : Development and Applications*, Proceedings of international Conf PHYSOR 2006, Vancouver, Canada, September 10-14, 2006
- [CRI-38] R. SANCHEZ, A. CHETAINE, *Synthetic acceleration for a 2D characteristic method in non regular meshes*, Proc of Int Conf on Mathematics and Computation, reactor Physics and Environmental Analysis in Nuclear Applications, M&C 1999, vol 2, p 1572-1586, Madrid
- [CRI-39] F. FEVOTTE, *Techniques de traçage pour la méthode des caractéristiques appliquée à la résolution de l'équation du transport des neutrons en domaines multidimensionnels*, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud 11, 2008
- [CRI-40] J.C JABOULAY, H. GOLFIER, V. BELLANGER, *PWR fuel pin neutronic calculating using APOLLO2 : validation and Benchmark analysis*, SERMA/LPEC-RT/08-4587/A, 2008
- [CRI-41] J. BUSSAC, P. REUSS, *Traité de neutronique*, collection enseignement des sciences, 2ème édition, Hermann, 1985
- [CRI-42] M. COSTE-DELCLAUX, *Modélisation du phénomène d'autoprotection dans le code de transport multigroupe APOLLO2*, thèse de doctorat, 2006
- [CRI-43] M. COSTE, Communication CEA, 1994
- [CRI-44] M. COSTE, S. MENGELLE, *Implementation of a subgroup method for self-shielding calculations in APOLLO2 code*, Proc of Int Conf on the Physics of Reactors, Mito, Ibaraki, Japan, 1996
- [CRI-45] S. MENGELLE, *APOLLO2 : calcul de référence utilisant un maillage énergétique très fin*, thèse de doctorat, Université Paris XI Orsay, 1995
- [CRI-46] M. LIVOLANT, F. JEANPIERRE, Communication CEA, 1974
- [CRI-47] P. REUSS, *Generalization of the Livolant-Jeanpierre theory for resonant absorption calculation*, Nuclear Science and Engineering, 92 :261, 1986

- [CRI-48] M. N NICOLAEV, V.F KHOKHLOV, *Système des constantes en sous-groupes*, INDC (CCP) 4/G, 1969
- [CRI-49] M. N NICOLAEV, *Méthode des sous-groupes pour la prise en compte de la structure résonnante des sections efficaces dans les calculs neutroniques*, (1ère partie), Atomnia Energïa, 1970
- [CRI-50] D.E CULLEN, *Application of the probability table method to multigroup calculations of neutron transport*, Nuclear Science and Engineering, 55 :387-400, 1974
- [CRI-51] D.E CULLEN, G.C POMRANING, *The multiband method in radiative transfert calculation*, Journal of Qauntum Spectroscopie Radiative Transfert, 24 :97-117, 1980
- [CRI-52] P. RIBON, J.M MAILLARD, Communication CEA, 1986

## Chapitre 2

# OUTILS DE CALCUL NEUTRONIQUE POUR LA SURETE-CRITICITE

*Le but de ce chapitre est de présenter les codes permettant de répondre à une problématique de type CBU. Il est centré sur les dernières versions des codes co-développés et utilisés au CEA/SPRC associés à l'évaluation de données nucléaires JEFF-3.1.1. Dans un premier temps sont évoqués les formulaires d'évolution fournissant le bilan matière combustible utilisé dans le calcul de criticité et dans un second temps le formulaire de criticité. Les aspects validation (avec des calculs de référence) et qualification expérimentale de chacun de ces outils seront ici abordés.*

Le Tableau 2.1 [OUT-1] présente les codes (l'astérisque indique un code Monte-Carlo) et évaluations de données nucléaires utilisés pour les études de CBU par les principaux laboratoires et entités dans le monde publiant sur ce sujet :

<b>Pays/organisation</b>	<b>Evolution</b>		<b>Criticité</b>	
<b>Pays</b>	<b>Code</b>	<b>Evaluation Données Nucléaires</b>	<b>Code</b>	<b>Evaluation Données Nucléaires</b>
<b>Belgique/Tractebel</b>	LWRWIMS	UKNDL	MCNP*	ENDF
<b>Belgique/BN</b>	WIMS8	JEF	KENO5A*	JEF
<b>France</b>	DARWIN APOLLO2 CESAR	JEF	CRISTAL TRIPOLI*	JEF
<b>Allemagne/AREVA</b>	CASMO SCALE KORIGEN	ENDF JEF	SCALE* MCNP*	ENDF
<b>Allemagne/GRS</b>	KENOREST*	JEF	KENOREST*	JEF
<b>Allemagne/WTI</b>	SCALE* HELIOS/SNF	ENDF	SCALE* MCNP*	ENDF
<b>Japon/JAERI</b>	SRAC	JENDL	VIM*	JENDL
<b>Japon/JNES</b>	SRAC SCALE*	JENDL ENDF	MVP* SCALE*	JENDF ENDF
<b>Espagne/ENUSA</b>	PHOENIX	ENDF	SCALE*	ENDF
<b>Espagne/CNS</b>	CASMO	ENDF	SCALE*	ENDF
<b>Espagne/SEA</b>	MONTEBURNS*	ENDF	SCALE*	ENDF
<b>Suède</b>	SCALE*	ENDF	KENO*	ENDF
<b>Suisse/PSI</b>	BOXER	JEF	BOXER	JEF
<b>Royaume-Uni/BNFL</b>	WIMS FISPIN	JEF	WIMS MONK*	JEF
<b>USA/Westinghouse</b>	PHOENIX	ENDF	KENO*	ENDF
<b>USA</b>	SCALE* CASMO	ENDF	SCALE* MCNP*	ENDF

Tableau 2.1 – Codes utilisés pour les calculs CBU dans les principaux pays impliqués

Les études menées au CEA/SPRC s'appuient sur les formulaires d'évolution DARWIN et CESAR ainsi que sur les voies déterministe APOLLO2 Sn et ponctuelle TRIPOLI-4 du formulaire CRISTAL. Les deux dernières versions des codes APOLLO2 et TRIPOLI-4 sont présentées ci-après en préalable à la description des formulaires généraux [OUT-2].

## 2.1 Transport neutronique

### 2.1.1 Produit APOLLO2.8/SHEM-MOC/CEA2005V4.1

#### 2.1.1.1 Présentation générale et performances

La mise en œuvre d'APOLLO2.8 permet de générer des sections efficaces autoprotégées, et le spectre neutronique à 281 groupes d'énergie en fonction du taux de combustion. PSAPHY, module interface de DARWIN, utilisera ensuite ces valeurs afin de constituer la bibliothèque de données nécessaire au calcul d'évolution qui sera réalisé avec PEPIN2. La dernière version du code, APOLLO2.8, intégrant la Méthode des Caractéristiques, utilise la bibliothèque externe de sections efficaces APOLIB basée sur la dernière version de l'évaluation de données nucléaires précédemment citée, JEFF-3.1.1. Cette bibliothèque contient des informations isotopiques et d'autoprotection [OUT-3]. Elle permet, grâce à la mise en place d'un maillage énergétique optimisé à 281 groupes (maillage SHEM) de réduire les erreurs liées au calcul d'autoprotection et aux interférences entre résonances [OUT-3] [OUT-4]. Les bibliothèques de données nucléaires CEA2005v4.1 utilisées par le code sont issues du processing

NJOY à partir des données de l'évaluation JEFF-3.1.1 [OUT-5]. Leur contenu (origine et données d'autoprotection) est illustré Figure 2.1.

ABS1SV	Ca40	CaH2	CM244	ES253	H2 D2O	KR84	M168	PU236	SB126	SR88	U234
AC226	Ca42		CM245	ES254	H2O	KR85	N169	PU237	SC45	SR89	U235
AC226	Ca42	CaH2	CM246	ES255	H3	KR86	M160	PU238	SE74	SR90	U236
AC227	Ca43		CM247	EU151	HE3	LA138	M161	PU239	SE76	TA181	U237
AG107	Ca43	CaH2	CM248	EU152	HE4	LA139	M162	PU240	SE77	TA182	U238
AG109	Ca44		CM249	BU152M	HF174	LA140	M164	PU241	SE78	TA183	U239
AG110M	Ca44	CaH2	CM250	EU153	HF176	L16	NP235	PU242	SE79	TA184	W182
AG111	Ca48		CNAT	EU154	HF177	L17	NP236	PU243	SE80	TC99	W183
AL27	Ca48	CaH2	C058	EU155	HF178	LU175	NP237	PU244	SE82	TE120	W184
AM241	CAH2		C059	EU156	HF179	LU176	NP238	PU246	S128	TE122	W186
AM242	CANAT		C060	EU157	HF180	MG24	NP239	RA223	S129	TE123	XE124
AM242M	CD106		CR50	F19	HFNA1	MG25	O16	RA224	S130	TE124	XE126
AM243	CD108		CR52	FE54	HG196	MG26	O16 TH2O	RA225	S1NA7	TE125	XE128
AM244	CD110		CR53	FE56	HG198	MGNA1	O17	RA226	SM144	TE126	XE129
AM244M	CD111		CR54	FE57	HG199	MN55	OSNAT	RB85	SM147	TE127M	XE130
AR36	CD112		CS133	FE58	HG200	MO100	P31	RB86	SM148	TE128	XE131
AR38	CD113		CS134	FENAT	HG201	MO92	PA231	RB87	SM149	TE129M	XE132
AR40	CD114		CS135	FM255	HG202	MO94	PA232	RE185	SM150	TE130	XE133
AS75	CD115M		CS136	GAJAT	HG204	MO95	PA233	RE187	SM151	TE131M	XE134
AU197	CD116		CS137	GO152	HO165	MO96	PE204	RH103	SM152	TE132	XE135
B10	CE140		CU63	GO153	IT27	MO97	PE206	RH105	SM153	TH227	XE136
B11	CE141		CU65	GO154	IT28	MO98	PE207	RU100	SM154	TH226	Y89
BA130	CE142		D2O	GO155	IT29	MO99	PE208	RU101	SN112	TH229	Y90
BA132	CE143		DIF	GO156	IT30	MONAT	PD102	RU102	SN114	TH230	Y91
BA134	CE144		DY160	GO157	IT31	N14	PD104	RU103	SN115	TH232	Y8170
BA135	CF249		DY161	GO158	IT35	N15	PD105	RU104	SN116	TH233	Y171
BA136	CF250		DY162	GO160	IN113	NA22	PD106	RU105	SN117	TH234	Z164
BA137	CF251		DY163	GE70	MI115	NA23	PD107	RU106	SN118	TH240	ZR ZRH
BA138	CF252		DY164	GE72	IR191	NE93	PD108	RU106	SN119	TH247	Z900
BA140	CF253		DY165	GE73	IR193	NE94	PD110	RU98	SN120	TH248	Z91
BE9	CF254		ER162	GE74	IRNAT	NE95	PM147	RU99	SN122	TH249	Z92
B1209	CH2		ER164	GE76	K39	ND142	PM148	S32	SN123	TH250	Z93
BK247	CL36		ER166	GRAPH	K40	ND143	PM148M	S33	SN124	TH251	Z94
BK249	CL37		ER167	H ZH	K41	ND144	PM149	S34	SN125	TH252	Z95
BK250	CLNAT		ER168	H1	KNAT	ND145	PM151	S36	SN126	TH253	Z96
BR79	CM240		ER159	H1 CAH2	KR78	ND146	PR141	SB121	SNAT	TM170	ZRH
BR81	CM241		ER170	H1 CH2	KR80	ND147	PR142	SB123	SR84	TM171	ZRNAT
C TCH2	CM242		ER171	H1 H2O	KR82	ND148	PR143	SB124	SR86	U232	
CA40	CM243		ER172	H2	KR83	ND150	PTNAT	SB125	SR87	U233	

JEF-2.2	EAF-03	JEFF-3.0	ENDF/B-VI.4	JEFF-3.1	JEFF-3.1 corrected errors	JEFF-3.1.1 new evaluations
---------	--------	----------	-------------	----------	---------------------------	----------------------------

ISOTape with self-shielding data  
ISOTape NOT present in the standard depletion chain  
ISOTape present in the standard depletion chain

**Figure 2.1 – Contenu des bibliothèques CEA2005v4.1**

Le produit APOLLO2.8/SHEM-MOC/CEA2005v4.1 est qualifié [OUT-6] (confrontation des résultats obtenus par rapport à des résultats expérimentaux) par comparaison à des programmes expérimentaux menés dans les réacteurs MINERVE et EOLE ainsi qu'à des résultats d'analyses de combustibles irradiés (Post Irradiation Experiments -PIE- data) dont nous pouvons citer quelques exemples concernant notre champ d'étude :

- **Qualification des paramètres REL au moyen d'expériences maquettes REP dans EOLE**
  - réactivité : programmes EPICURE-UH1.2 et MISTRAL1 (UOX), MISTRAL3 (MOX), ERASME (HTC)
  - puissance crayon par crayon : EPICURE-UH1.4 (spectrométrie gamma)
  - effet modérateur : programme CREOLE (UOX-MOX)
  - coefficient de vide : EPICURE-UH1.2 (UOX), MISTRAL3 (MOX)
  - effet Doppler : oscillations dans MINERVE d'échantillons UOX et MOX de différents enrichissements et teneurs
- **Evolution de l'inventaire combustible** : base de qualification des REP-MOX comprenant les données des programmes Saint-Laurent B1 et Dampierre 2 notamment.



Pour chaque paramètre, l'erreur de calcul et son incertitude ont été quantifiées [OUT-3] [OUT-6]. Les écarts concernant les paramètres REL sont résumés dans le Tableau 2.2.

Paramètre REP	UOx	MOx
$k_{\text{eff}}$	+240 ± 150 pcm	+270 ± 230 pcm
Pic de puissance	+0.1 ± 0.3%	•
$dK/dT_{\text{comb}}$ (coeff Doppler)	-3.2 ± 3.0%	-4.6 ± 3.0%
$dK/dT_{\text{mod}}$	-0.1 ± 0.3 pcm/°C	+1.8 ± 0.4 pcm/°C
$\Delta K/\Delta V_{\text{mod}}$	+0.9 ± 1.0%	+2.1 ± 0.9%
$UO_2 - Gd_2O_3$ $\rho$ initiale	+1.3 ± 2.3%	•
Gain réflecteur $H_2O$	+1.0 ± 2.0%	•
Gain réflecteur REP	-0.1 ± 2.0%	
Gain réflecteur EPR	+3.0 ± 2.0%	•

Tableau 2.2 – Comparaison solveurs APOLLO2  $P_{ij}$  et MOC (CEA2005)

Sa validation est effectuée pour les applications REP que REB (calculs assemblage) en comparaison avec des résultats donnés par le code Monte-Carlo TRIPOLI-4 avec des bibliothèques de données nucléaires CEA2005 cohérentes et en évolution par comparaison avec un calcul de référence MOC à 281 groupes avec maillage spatial raffiné [OUT-7] selon le processus illustré Figure 2.2. Les niveaux de précision atteints sont très satisfaisants :

- calcul de  $k_{\text{eff}}$  à -200 pcm ( $\pm 17$  pcm à  $1\sigma$ ) par rapport à TRIPOLI-4 et à -150 pcm près par rapport au calcul utilisant le schéma de référence SHEM-MOC (combustible frais) ;
- en évolution l'écart en réactivité par rapport à la référence MOC s'annule pour un taux de combustion d'environ 40 GWj/t et ne dépasse pas 80 pcm à 60 GWj/t et -130 pcm pour le cas MOx quelque soit le taux de combustion ;
- les distributions crayon par crayon des taux d'absorption et de puissance en évolution sont calculées à mieux que  $0.7\% \pm 0.2\%$  à  $1\sigma$  ;
- l'efficacité des grappes de contrôle est calculée à mieux que 1%.

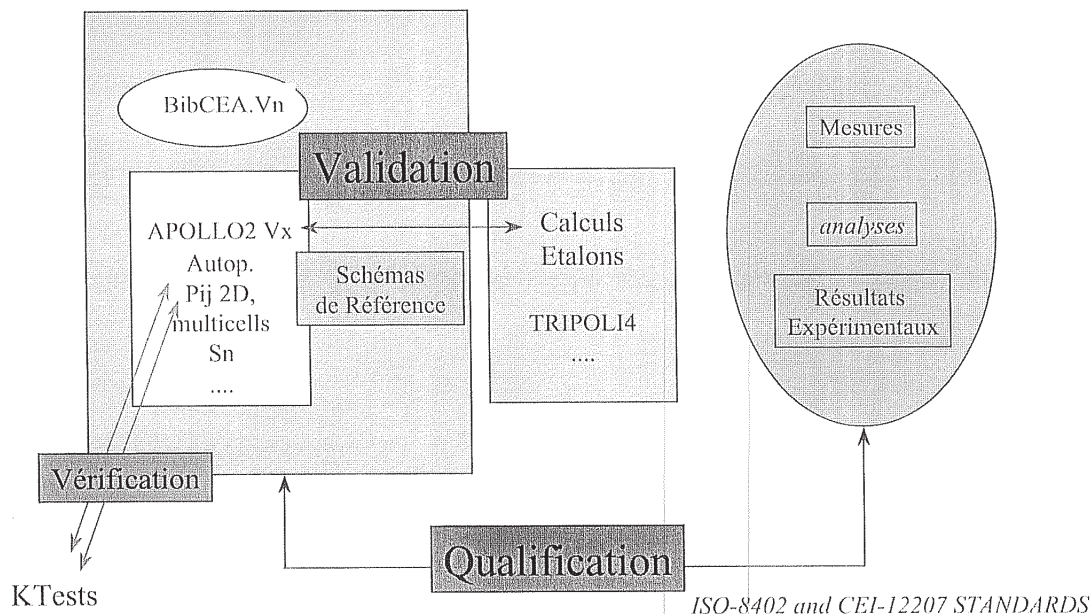


Figure 2.2 – Vérification/Validation/Qualification du code APOLLO2.X

### 2.1.1.1.1 Principe du schéma de calcul SHEM-MOC

Le schéma de calcul SHEM-MOC pour les applications REL, comporte deux principales étapes [OUT-3] illustrées Figure 2.3 :

1. Un premier calcul de flux est réalisé avec la méthode des probabilités de collision en utilisant l'option UP1 supposant, sur les faces de chaque cellule, le flux angulaire constant et linéaire en angle et sur la même géométrie que celle ayant servi au calcul d'autoprotection.
2. Les sections efficaces ainsi obtenues sont alors utilisées pour un second calcul à 281 groupes (schéma de référence) ou à 26 groupes (REL2005) mettant en œuvre la méthode des probabilités de collision. L'opération de condensation de 281 à 26 groupes préserve les taux de réactions. Les milieux autoprotégés de la géométrie multicellule  $P_{ij}$  sont dupliqués sur la géométrie hétérogène destinée au calcul MOC.

Dans le cadre du schéma REL2005, les options de calcul suivantes sont recommandées [OUT-3] :

- Regroupement des cellules pour le calcul d'autoprotection et de flux 1er niveau,
- Autoprotection des mélanges 33-200 eV ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ), ré-autoprotection de la résonance à 36.7 eV de l' $^{238}\text{U}$  (WR),
- Équivalence énergétique  $P_{ij}$  281g/  $P_{ij}$  26g,
- Loi de choc  $P_0$  corrigée,
- Maillage spatial MOC simplifié par rapport au maillage du schéma de référence SHEM-MOC ( $\Delta R=0.1\text{cm}$ ,  $N\Phi=24$ ,  $N\Psi=2$ , quadrature de type Bickley) de type « moulin à vent », dans le cas SHEM-MOC  $\Delta R=0.04\text{ cm}$ ,  $N\Phi=24$ ,  $N\Psi=3$  ;
- Assemblages barrés et MOx : environnement constitué de 3 rangées de crayons UOx, discrétisés en 4 couronnes, BU = 20 GWj/t ;

Le principe du schéma de calcul est présenté Figure 2.3 [OUT-6] :

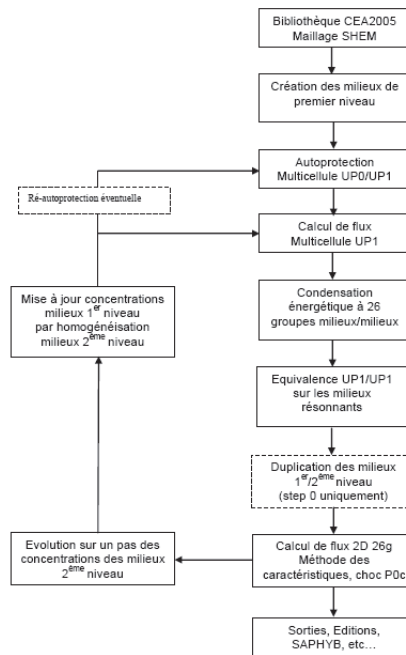


Figure 2.3 – Principe du schéma de calcul optimisé REL2005

### 2.1.1.1.2 Maillage énergétique SHEM

Le maillage énergétique SHEM (Santamarina-Hfaiedh Energy Mesh) à 281 groupes a été élaboré pour



satisfaire les quatre objectifs suivants [OUT-4] :

- réduire les erreurs multigroupes liées à l'autoprotection des résonances. Il permet, y compris pour les hauts taux de combustion de calculer à mieux que 1% le taux d'absorption dans les résonances épithermiques de chaque produit de fission et actinide mineur ;
- éviter le calcul par un modèle d'autoprotection de l'absorption dans les grandes résonances ( $E(^{238}\text{U})=6.7$  et  $20.9$  eV,  $E(^{236}\text{U})=5.4$  eV,  $E(^{242}\text{Pu})=2.7$ eV,  $E(^{109}\text{Ag}) = 5.2$  eV,  $E(^{177}\text{Hf})= 2.4$  eV,  $E(^{178}\text{Hf})=7.8$ eV) pour lesquelles, à basse énergie, les hypothèses du formalisme d'autoprotection sont peu valides (ralentissement pur, factorisation du flux, modèle WR, Dancoff peu précis avec un calcul  $P_{ij}$  multicellules). Pour les énergies inférieures à  $22.5$  eV, un maillage fin permet de s'affranchir du calcul d'autoprotection des résonances (seul un élargissement Doppler est effectué) tout en augmentant la précision du bilan neutronique épithermique ;
- prendre en compte les effets de protection mutuelle entre les isotopes (recouvrement des résonances) [OUT-8] ;
- améliorer le calcul du ralentissement en spectre rapide grâce à la considération des résonances dans les matériaux de structure et le caloporteur (Al, Mn, Fe, O, Na) et à un maillage plus fin pour la description des réactions à seuil (n, n'), (n, f), (n, 2n) de l' $^{238}\text{U}$ .

Il permet de plus de s'affranchir de l'autoprotection des principaux PF du CBU pour les calculs de combustibles irradiés. L'intérêt de son découpage énergétique a été démontré dans le cadre de calculs de perte de réactivité et d'évolution avec le taux de combustion. Le Tableau 2.3 [OUT-9] illustre l'apport de l'utilisation de ce nouveau maillage énergétique :

Combustible/réacteur		UOX	MOX
TRIPOLI-4 - JEFF-3.1	$k_{\text{inf}}$	1,31780	1,15642
	$\Delta\sigma$ (pcm)	22	20
APOLLO-2 - CEA2005 - XMAS	$k_{\text{inf}}$	1,31407	1,15267
	$\Delta\rho$ (pcm)	-215	-281
APOLLO-2 - CEA2005 - SHEM	$k_{\text{inf}}$	1,31537	1,15365
	$\Delta\rho$ (pcm)	-140	-208

Tableau 2.3 – Comparaison  $k_{\text{inf}}$  APOLLO2 CEA2005 XMAS / SHEM

#### 2.1.1.1.3 Géométrie utilisée dans le cadre du calcul 2ème niveau MOC

Comme nous l'avons évoqué dans la présentation du schéma de calcul SHEM-MOC, le calcul de flux MOC « 2ème niveau » s'effectue sur une géométrie exacte hétérogène à deux dimensions différente de celle utilisée pour le précédent calcul  $P_{ij}$  mais cohérente. Cette géométrie, présentant un maillage spatial des cellules de type « moulin à vent », est générée dans le cadre CEA grâce au code Silène [APPLI-36]. L'IHM Silène développée par le DM2S/SERMA permet de construire visuellement des géométries non-structurées en 2D et 3D par plan, de générer des données pour des codes de calculs dont APOLLO2 (génération de phrases GIBIANE) et TRIPOLI-4 et de post-traiter les résultats de calcul. Elle a été initialement développée pour fournir des données géométriques pour la maquette TDT (Two/Three Dimensional Transport) permettant de traiter des géométries non structurées pour APOLLO2 et résolvant l'équation de Boltzmann en  $P_{ij}$  ou MOC. L'ensemble des données formant une géométrie est appelé « motif ». Celui-ci se compose d'objets représentant les nœuds (points), équations (segments, arcs, cercles et développantes de cercles), milieux, régions (pour le calcul du flux) et macro-régions (pour le calcul des courants d'interface), mailles, niveaux axiaux (cas 3D), références à d'autres motifs, zones de sorties et conditions aux limites. Sa description est locale, les ensembles d'équations formant des figures fermées définissent des mailles comme présenté Figure 2.4.

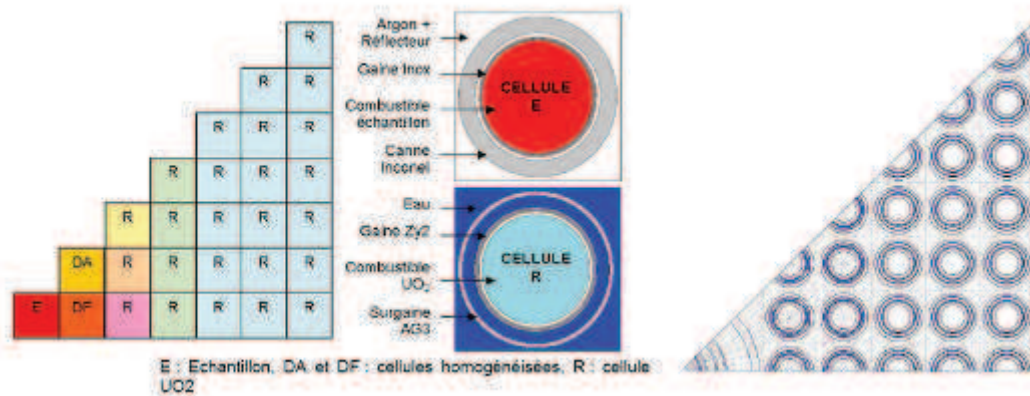


Figure 2.4 – Géométries multicellule  $P_{ij}$  et hétérogène MOC (oscillation dans R1-UO2 MINERVE)

Notons que les deux géométries ne représentent qu'1/8e d'assemblage.

### 2.1.1.2 TRIPOLI-4 : définition, spécificités

Développé dans le cadre d'actions de R&D communes entre le CEA, EDF et AREVA, le code TRIPOLI-4 [OUT-11] est un code 3D permettant la simulation du transport de particules (neutrons et gammas) grâce à la méthode probabiliste de Monte-Carlo, utilisé en tant que code de référence pour les études de criticité (notamment dans le formulaire CRISTAL V1), de cœur, de radioprotection et d'instrumentation. Il permet le calcul des grandeurs suivantes : flux volumique/surfacique/ponctuel, courant, taux de réaction, débit équivalent de dose, dépôts d'énergie, énergie de recul et facteur de multiplication effectif. Le développement de la première version de TRIPOLI a été entrepris au début des années 70. TRIPOLI-4 s'appuie sur les concepts des versions antérieures auxquelles ont été ajoutées de nouvelles caractéristiques fondamentales :

- développement en C et C++ ;
- possibilité de description des géométries combinatoires ou surfaciques ;
- calcul de perturbation ;
- représentation exacte ponctuelle des sections efficaces et condensation possible ;
- parallélisation des calculs ;
- calcul de variance par méthode de rééchantillonnage bootstrap ;
- simulation réalisée sur tout le domaine énergétique ;
- distribution prédéfinie par le code ou définition algébrique des sources.

TRIPOLI-4 permet la définition de la géométrie d'un problème à partir de volumes élémentaires, de combinaisons de ces volumes, d'équations de surfaces ou encore de réseaux, sans approximation puisque sans découpage en mailles distinctes. Les sections efficaces utilisées par TRIPOLI-4 sont soit des sections ponctuelles produites par NJOY, soit des sections multigroupes (maillage énergétique très fin) autoprotégées produites par APOLLO2 ou TRIPOLI-4, soit encore des sections multigroupes associées à des Tables de Probabilités. A noter qu'un résultat TRIPOLI-4 est un couple de valeurs : une moyenne et son écart-type. Concernant le  $k_{\text{eff}}$ , il en existe plusieurs estimateurs :

- KSTEP : comptabilise le nombre de neutrons produits par fission,
- KCOLL : estimateur de la production à la collision,
- KTRACK : estimateur de parcours,
- MACRO KCOLL : variante de KCOLL.

Il peut être utile de vérifier la cohérence de ces différents estimateurs en fin de calcul. Le dossier de validation et de qualification (comparaison calcul – expérience) de TRIPOLI-4, résultat du processus illustré Figure 2.5, est constitué sur la base de plusieurs centaines de benchmarks internes et externes au CEA :

- radioprotection : une dizaine de benchmarks réalisés à partir de la base SIMBAD ;
- criticité : environ 700 benchmarks traités à partir de la base ICSBEP (International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project) ;
- cinétique : une dizaine de benchmarks « Livermore Pulse Sphere » calculés.

De plus, son utilisation dans de nombreux benchmarks internationaux dans les domaines fluide cuve, Crédit Burn-up et neutronique (UOx et MOx), instrumentation et dosimétrie, permet de compléter cette validation/qualification mais aussi de contribuer à l'amélioration des données nucléaires et des résultats de calcul (Figure 2.5) [OUT-12]. La dernière version disponible est actuellement TRIPOLI-4.8 [OUT-13] qui permet désormais la prise en compte des réactions photo-nucléaires.

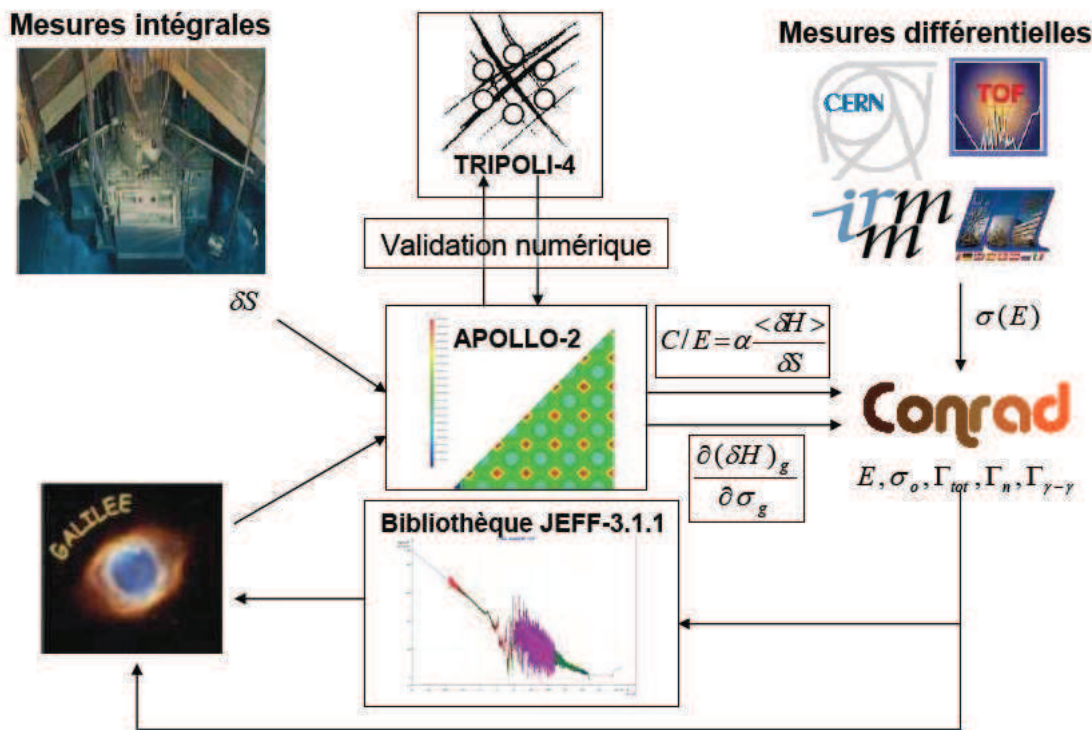


Figure 2.5 – Retour sur les données nucléaires

## 2.2 Calcul de bilan matière

### 2.2.1 Description du formulaire d'évolution DARWIN2.3

Le formulaire DARWIN (Développement Appliqué au recyclage Vérifié et Validé pour les Installations Nucléaires) permet de calculer des grandeurs caractéristiques de combustibles et de structures irradiés en réacteur telles que concentration, masse, activité, puissance résiduelle, radiotoxicité, en chaque point du cycle et à tout instant, ce dès la fin de l'irradiation jusqu'aux temps de refroidissement géologiques. Il peut être utilisé pour réaliser des études portant sur les types de combustibles actuels (UOx, MOX) mais aussi innovants (MIX, APA, PuTh) et ce pour toutes les filières (REP, REB,

RNR, réacteurs avancés) pour les programmes concernant l’aval du cycle. Son développement par le CEA/SERMA et le SPRC a été réalisé dans le cadre d’une coopération avec EDF et AREVA [BM-9]. Le module d’évolution PEPIN du formulaire DARWIN2 résout les équations généralisées de Bateman pour calculer les concentrations des différents noyaux à n’importe quel instant de l’irradiation et du refroidissement.

Le formulaire (Figure 2.6) est composé d’une Base de Données Physiques rassemblant des constantes nucléaires issues de la bibliothèque JEFF-3.1.1 (version 2.3) (données de décroissance, rendements de fission, énergie dégagée par fission,...), des bibliothèques cycle à n groupes d’énergie permettant de compléter les isotopes et/ou réactions non décrits dans les chaînes et/ou les bibliothèques utilisées par les codes APOLLO2 ou ECCO (CEA2005 ou ERALIB) et des chaînes de filiation décrivant les décroissances radioactives successives des différents isotopes et leur filiation par réactions neutroniques. Des données neutroniques d’irradiation (BDN) viennent s’ajouter parallèlement à cette Base de données Physiques. Elles proviennent de calculs effectués avec les formulaires « cœur » (APOLLO2-CRONOS pour la filière REL ou ECCO-ERANOS pour la filière RNR) et correspondent à des spectres de condensation, des sections efficaces autoprotégées ainsi qu’à des niveaux de flux et des taux de combustion. Ces données neutroniques d’irradiation sont disponibles dans des fichiers d’archivage de type SAPHYB pour APOLLO2 et ARCHIVE pour ERANOS.

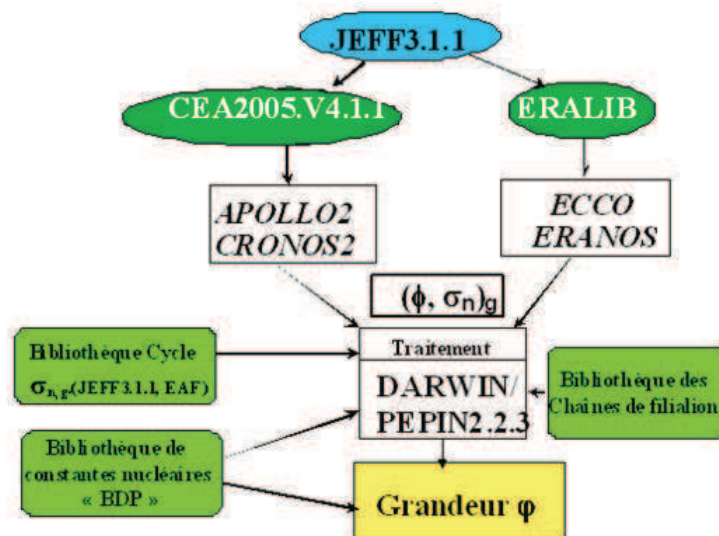


Figure 2.6 – Synoptique général du formulaire DARWIN2.3

Le calcul effectué par le code de transport déterministe APOLLO2.8 permet d’obtenir des bibliothèques de sections efficaces multigroupes qui sont condensées à un groupe pour le calcul avec le module PEPIN2 qui fait « évoluer » la composition du combustible à partir de la Base de Données Physiques et de la Base de Données Neutroniques en se basant sur une description fine de l’historique d’irradiation (Figure 2.6). Précisons que la qualité des résultats DARWIN dépend de la pertinence des données présentes dans la Base de Données Neutroniques et que leur précision dépend de l’historique d’irradiation et de la connaissance physique du combustible par PEPIN. Ensuite, différents modules permettent d’accéder aux grandeurs physiques recherchées. La méthode utilisée pour le calcul d’évolution est celle de Runge-Kutta. DARWIN/PEPIN2.3 présente également deux fonctionnalités complémentaires :

- PERTURBATION : permet de calculer l’écart entre deux valeurs d’une grandeur physique fournie,

une perturbée et l'autre non. Les paramètres pouvant être perturbés sont la constante de décroissance, la section efficace partielle d'interaction avec le neutron, la concentration isotopique initiale ainsi que le flux total ;

- **INVERSION** : permet de déterminer pour un ou plusieurs isotopes leurs différentes voies de formation et de quantifier la contribution de chacune à la concentration totale de l'isotope.

La **qualification** est le processus de comparaison des résultats de calcul d'un code par rapport à des valeurs expérimentales représentatives du domaine d'application du code considéré. La base de qualification du formulaire DARWIN2 [OUT-15] s'appuie sur un programme expérimental représentatif de configurations industrielles réelles, concernant la physique du cycle (bilan matière, puissance résiduelle, criticité,...) pour tous types de réacteurs (REP, REB, RNR). Il est le résultat d'un important programme d'analyses isotopiques d'échantillons de combustible irradiés ainsi que d'analyses de solutions obtenues par dissolution d'assemblages entiers à l'usine de La Hague. Les tableaux en annexe 1 et 2 extraits de publications de l'AEN, détaillent une partie de cette base qui comporte des résultats d'analyse issus notamment des programmes suivants :

- concernant les REP UOx : Bugey 3, Fessenheim 2, Gravelines 2-3, CRUAS URE et HTC, programmes de dissolution de combustibles à La Hague, programme MALIBU, programme ALIX-Gravelines 5
- concernant les REP MOx : Saint Laurent B1, Dampierre HTC, programme MALIBU. Des programmes complémentaires en cours concernant la gestion « parité MOx » sont également d'intérêt pour cette étude.

Les résultats de qualification sont donnés sous forme d'écarts calcul-expérience (C-E)/E associés à une incertitude totale. Celle-ci est évaluée à partir de la propagation d'incertitudes technologiques et des incertitudes d'analyses chimiques, en combinant quadratiquement les contributions supposées indépendantes des paramètres suivants :

- température effective du combustible, déterminée par le code de thermomécanique METEOR [OUT-16] développé par le CEA/DEC (valeur retenue généralement  $\pm 50^{\circ}\text{C}$ ) ;
- température du modérateur à la cote axiale du tronçon considéré (valeur retenue généralement  $\pm 2^{\circ}\text{C}$ ) ;
- recalage en taux de combustion sur les rendements de fission des isotopes du néodyme (valeur retenue généralement  $\pm 1,5\%$ ) ;
- analyses chimiques (valeur retenue généralement inférieure à  $0,5\%$ ) ;
- teneur massique en  $^{235}\text{U}$ , teneur initiale en plutonium pour des assemblages MOx (valeur retenue généralement  $0,01\%$  en absolu) ;
- taux de combustion de l'environnement UOX entourant un assemblage MOX, sensible pour les crayons périphériques.
- description du suivi de cycle.

Notons que les résultats de la qualification de DARWIN2/JEFF-3.1.1/SHEM sont en accord avec ceux de la qualification APOLLO2.8/JEFF-3.1.1/SHEM.

### 2.2.2 Description du formulaire simplifié d'évolution CESAR 5

CESAR (Code d'Evolution Simplifié Appliqué au Retraitement) est un code d'évolution développé au SPRC dans le cadre d'un partenariat CEA/AREVA-NC et le code de référence de l'usine de retraitement de La Hague. Il est également utilisé par AREVA-SGN, AREVA-CANBERRA, l'IRSN et l'AIEA. Dans sa version 5 [OUT-17] (Figure 2.7), il permet un rapide calcul de l'évolution isotopique de 109 actinides (de  $^{207}\text{Tl}$  à  $^{257}\text{Fm}$ ), 209 produits de fission (de  $^{72}\text{Zn}$  à  $^{166\text{m}}\text{Ho}$ ) et de 146 produits d'activation (de  $^1\text{H}$  à  $^{160}\text{Gd}$ ) et fournit des valeurs de concentrations, puissance résiduelle, activités, sources de rayonnements pénétrants tout comme DARWIN, sous flux (résolution des équations de Bateman



par la méthode de Runge-Kutta) et hors flux (méthode matricielle) jusqu'aux temps de refroidissement géologiques.

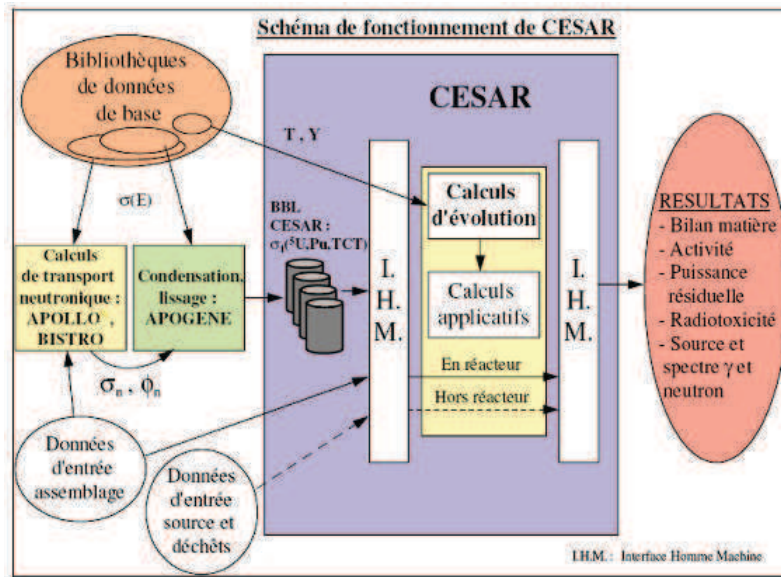


Figure 2.7 – Synoptique général du formulaire CESAR 5

Le code CESAR 5 bénéficie d'une validation par rapport au formulaire DARWIN2. CESAR 5 est en quelque sorte une version « industrielle » de DARWIN permettant de traiter l'ensemble des données physiques du cycle. Le Tableau 2.4 présente le domaine d'application de CESAR 5 pour les problématiques REP de type 17 x 17.

Combustible/réacteur	Enrichissement/teneur initial(e)	Burnup maximal (GWj/t)
REP 17 x 17 UOx	1,4 % < <sup>235</sup> U < 5 %	100
REP 17 x 17 UOx avec URE	3,7% < <sup>235</sup> U < 4,5 %	70
REP 17 x 17 MOx	4,5 % < Pu < 12 % <sup>235</sup> U=0,25%	70
structures REP 17 x 17 UOx	3,25% < <sup>235</sup> U < 4,95 %	70
structures REP 17 x 17 MOx	4,5 % < Pu < 8 % <sup>235</sup> U=0,25%	70

Tableau 2.4 – Domaine d'application des calculs d'évolution simplifiés CESAR 5 des REP 17 x 17

## 2.3 Calcul de criticité : Présentation générale du formulaire CRISTAL V2

Le formulaire CRISTAL, développé conjointement par le CEA et l'IRSN avec l'appui d'AREVA NC, a pour objectif de répondre aux besoins des industriels, des laboratoires de R&D et de l'ASN pour la prévention du risque « criticité » dans les installations du cycle (dimensionnement des installations, dossiers de sûreté-criticité) et durant le transport. CRISTAL V1, version industrielle actuelle, permet le couplage avec DARWIN2 et CESAR5 pour les études de prise en compte du CBU. La première version de CRISTAL V2 [OUT-18] [OUT-19] dite V2.0, dont la livraison est prévue pour la fin de l'année 2013, disposera de quatre voies de calcul se basant sur les dernières versions de codes et bibliothèques d'origine JEFF-3.1.1 : une voie ponctuelle « TRIPOLI-4 », une voie multigroupe « APOLLO2 Sn », une voie multigroupe « APOLLO2 – MORET 5 » (développement IRSN) et une voie « norme ». Les

voies multigroupes sont basées sur l'enchaînement d'un calcul de type  $P_{ij}$  pour l'élaboration des sections efficaces multigroupes autoprotégées, précédant l'étape de calcul du  $k_{eff}$  selon la méthode des ordonnées discrètes (APOLLO2 Sn) ou en utilisant un calcul Monte Carlo multigroupe (MORET 5). L'utilisation du solveur MOC sera examinée à partir de la version V2.1. Les composants de CRISTAL V2.0 sont décrits sur la Figure 2.8.

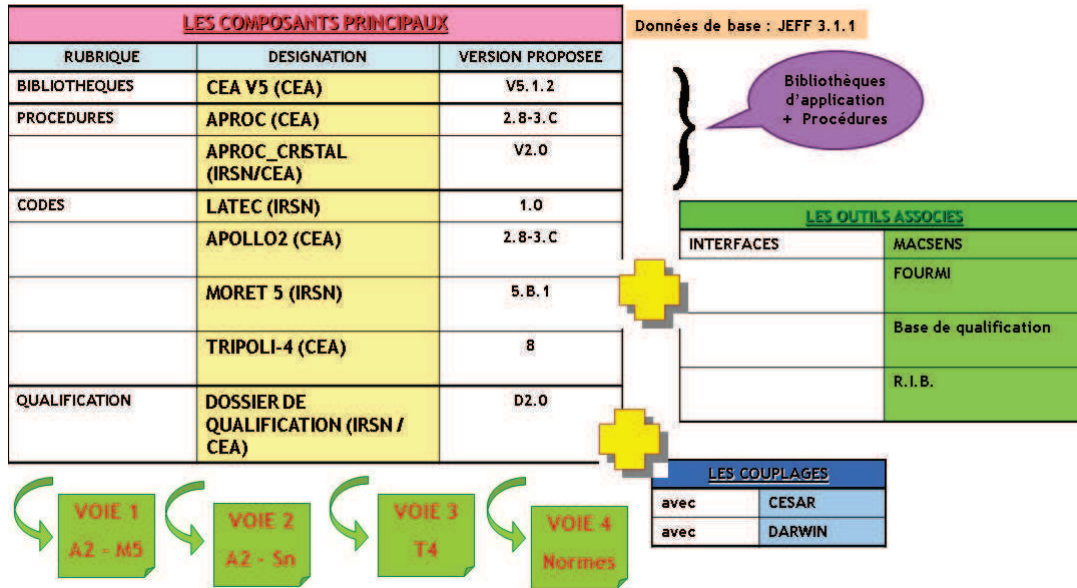


Figure 2.8 – Le formulaire de criticité CRISTAL V2

Développé par l'IRSN en Java, L'Atelier d'Expertise de Criticité, LATEC, a pour objet de permettre le suivi et la gestion de toutes les phases d'une étude de sûreté-criticité : modélisation des installations (géométrie et matériaux), lancement des calculs, vérification des résultats, gestion des notes associées, accès aux informations propres à la qualification des codes et des données utilisés. L'interface FOURMI permet le calcul et la présentation automatique des paramètres admissibles et/ou critiques à partir des résultats de calculs de normes APOLLO2-Sn. Les outils RIB (Représentativité Incertitudes Biais) (CEA) et MACSENS (outil MORET d'Aide à la Caractérisation et aux études de SENSibilité) (IRSN) permettent de sélectionner les expériences représentatives d'une configuration étudiée et de déterminer les biais de calcul et les incertitudes associées dues aux données nucléaires de base suite à l'interprétation de ces expériences représentatives. Un important programme d'exploitation de résultats d'expériences critiques de diverses origines a été mené pour la qualification de CRISTAL. Environ 520 configurations expérimentales représentant des géométries et des milieux différents rencontrés dans les installations du cycle forment la base de qualification de CRISTAL V1 [OUT-20]. La base de qualification de CRISTAL V2 est basée sur 854 expériences critiques dont 90 % sont à caractère public, regroupées dans le Handbook de l'ICSBEF après un processus d'évaluation rigoureux. Concernant le CBU, les expériences, moins nombreuses, sont généralement à caractère privé (essais expérimentaux spécifiques réalisés à Valduc dans l'Appareil B et mesures de section efficace de capture de produits de fission et de perte globale de réactivité pour divers combustibles irradiés dans le réacteur piscine MINERVE par exemple) dans des spectres représentatifs des combustibles REP (UOx et MOX) et REB (UOx)), soit de par des partenariats spécifiques (CEA-AREVA par exemple), soit provenant de programmes internationaux propriétaires (exemples : programme REBUS réalisé en collaboration avec la Belgique et programme CERES réalisé en collaboration avec AEA britannique) [OUT-21].



## 2.4 Conclusion

Les outils composant la chaîne de calcul spécifiquement dédiée aux études CBU développée au CEA/SPRC ont été présentés dans ce chapitre. Forte d'une importante base de qualification, elle est basée sur l'enchaînement des dernières versions de formulaires d'évolution du combustible (DARWIN-2.3) et de sûreté-criticité (CRISTAL V2) et utilise des données nucléaires et un maillage énergétique cohérent (JEFF-3.1.1/SHEM). Les calculs d'évolution effectués avec DARWIN et le schéma de calcul spécifique basé sur le schéma de référence « CYCLE2008 » et le code APOLLO-2.8 permettent de fournir les concentrations isotopiques en fin d'irradiation ou après un refroidissement. Le formulaire DARWIN a été développé à partir des années 1990 afin de répondre aux besoins de caractérisation physique des combustibles irradiés et des déchets. Les calculs d'évolution des isotopes en réacteur et des grandeurs physiques attendues (concentrations par exemple) sont fournis par le module PEPIN sur la base de bibliothèques neutroniques obtenues par le code d'assemblage APOLLO-2. Le formulaire de sûreté-criticité CRISTAL est composé des librairies communes aux applications, des procédures et des schémas de calcul recommandés, des codes de calcul spécifiques et des interfaces associées. Il est développé conjointement par le CEA et l'IRSN avec le support de AREVA-NC et utilisé par la majeure partie des industriels français pour leurs études de sûreté-criticité. Les points importants à souligner concernant ces outils sont les suivants :

- ils bénéficient des derniers travaux concernant les données nucléaires, les formalismes d'autoprotection et les méthodes associées au transport permettant d'atteindre des précisions satisfaisantes concernant les paramètres neutroniques et la prédiction du bilan matière, notamment des isotopes de la criticité ;
- les codes d'évolution DARWIN-2.3 et CESAR-5 et l'évaluation JEFF-3.1.1, sont communs pour les études réacteur et cycle ;
- la pertinence de l'évaluation JEFF-3.1.1, ayant tiré profit du retour d'expérience JEF-2.2, a été démontrée par les études de qualification du bilan matière et des paramètres neutroniques (PIE Data, expériences intégrales). Elle est l'évaluation de référence pour toutes les applications y compris la criticité ;
- la prochaine version du formulaire CRISTAL bénéficie en particulier de l'ensemble des travaux menés. Elle s'appuie sur la bibliothèque CEA V5.1.2, officiellement associée à l'évaluation JEFF-3.1.1, sur le maillage énergétique SHEM à 281 groupes (voies multigroupes) et sur les formalismes d'autoprotection associés (mélanges). De plus, son ergonomie a été améliorée grâce à l'outil LATEC permettant la génération de jeux de données pour toutes les voies de calcul avec un couplage déjà en place avec CESAR-5 pour le traitement des problématiques CBU.

## Outils de calcul neutronique pour la sûreté-criticité : Bibliographie

- [OUT-1] *Advances in applications of Burn-up Credit to enhance spent fuel transportation, storage, re-processing and disposition*, IAEA TEC-DOC 1547, London, UK, 29 August, 2 September, 2005
- [OUT-2] A. BARREAU ET AL., *Recent advances in French Validation Program and Derivation of the Acceptance Criteria for UOx fuel*, IAEA TEC-DOC 1547, London, UK, 29 August, 27 September, 2005
- [OUT-3] A. SANTAMARINA ET AL., *APOLLO2.8 : a validated code package for PWR neutronics calculations*, ANFM, Hilton Head Island, USA, April 12-15, 2009
- [OUT-4] N. HFAIEDH, *Nouvelle méthodologie de calcul de l'absorption résonnante*, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 2006
- [OUT-5] A. SANTAMARINA ET AL., *JEFF-3.1.1 nuclear data library*, JEFF report 22, Validation results from JEF-2.2 to JEFF-3.1.1, OECD/NEA, 2009
- [OUT-6] A. SANTAMARINA ET AL., Communication CEA, 2009
- [OUT-7] J.F VIDAL & al., Communication CEA, 2008
- [OUT-8] M. COSTE, S. MENGELLE, *New resonant mixture self-shielding treatment in the code APOLLO2*, Proc of Int Conf PHYSOR 2004, « The Physics of Fuels Cycles and Advanced Nuclear Reactors Systems », Chicago (USA), April 2004
- [OUT-9] J.C JABOULAY, H. GOLFIER, V. BELLANGER, Communication CEA, 2008
- [OUT-10] Z. STANKOVSKI, *Implementation of component concept in SILENE 2D/3D pre and post-processing GUI*, Proceedings of M&C, Monterey, USA, 2007
- [OUT-11] J.P BOTH ET AL., *TRIPOLI-4 : code de transport Monte-Carlo, fonctionnalités et applications*
- [OUT-12] P. LECONTE ET AL., *Mesures dans le réacteur MINERVE pour la validation des données nucléaires intégrales*, présentation Groupement de Recherche GEDEPEON CEA-CNRS-EDF-AREVA-  
NP, Paris, 2009
- [OUT-13] J.C TRAMA ET AL., *Overview of TRIPOLI-4 version 7 continuous-energy Monte-Carlo Transport Code*, Proceedings of Int Conf ICAPP 2011, Nice, France, May 2-5, 2011
- [OUT-14] A. TZILANIZARA ET AL., *DARWIN : an evolution code system for a large range of applications*, Proc of ICRS-9, Tsukuba, Japan, October, 1999
- [OUT-15] L. SAN FELICE, Communication CEA, 2009
- [OUT-16] C. STRUZIK, Y. GUERIN, *The METEOR/TRANSURANUS fuel performance code*, Proc of Int Conf FUMEX - 96, Bombay, India, April 1-5, 1996
- [OUT-17] J.M VIDAL ET AL., *CESAR5.3, an industrial tool for Nuclear Fuel and Waste Characterisation*, Proc of Int Conf WM'12, Tucson, Arizona, USA, February 26-March 1, 2012
- [OUT-18] J.M GOMIT, J. MISS, A. AGGERY, C. MAGNAUD, J.C TRAMA, C. RIFFARD, *CRISTAL Criticality Package, Twelve years later and new features*, Proceedings of Int Conf ICNC, Edinburgh, UK, 19-22 September, 2011
- [OUT-19] J.M GOMIT, A. AGGERY, C. MAGNAUD, J. MISS, C. RIFFARD, J.C TRAMA, Communication CEA, 2010
- [OUT-20] J.M GOMIT, *CRISTAL, un outil de calcul de criticité de nouvelle génération*, in Clefs CEA n°45, p87-89, 2001
- [OUT-21] J.M GOMIT ET AL., *CRISTAL : un formulaire de sûreté-criticité de nouvelle génération*, IPSN, rapport scientifique et technique, p92-98, 2002

## Chapitre 3

# ETAT DE L'ART DE LA METHODOLOGIE ET DES HYPOTHESES RETENUES POUR LE CALCUL DU CBU

*L'objectif de ce chapitre est de faire un état des lieux des méthodologies de prise en compte du CBU REP-MOx et de leurs performances. Les particularités liées à la difficulté du traitement du combustible MOx par rapport au combustible UOx seront identifiées. En regard de cet état de l'art et des besoins qu'il met en évidence pour la définition d'une méthodologie CBU applicable aux combustibles REP-MOx, les axes principaux de travail seront dégagés.*

### 3.1 Problématique Crédit Burn-up (CBU)

En règle générale, les études de sûreté-criticité concernant les combustibles usés stockés, transportés ou retraités sont très conservatives et considèrent ce combustible comme neuf donc le plus réactif possible (teneur maximale en matière fissile,  $^{235}\text{U}$  pour les combustibles UOx et  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$  pour les combustibles MOx). Or, au cours de l'irradiation, la matière fissile est progressivement consommée et de nouveaux corps sont formés. Ainsi, sa réactivité et sa composition varient fortement. Le « Crédit Burn-Up » (CBU) est la prise en compte de l'antiréactivité du combustible irradié par rapport au combustible neuf. Sa considération dans les études de sûreté-criticité des installations est synonyme de gain économique substantiel pour l'industriel. Les tendances actuelles observées aussi bien pour les combustibles UOx (augmentation de l'enrichissement initial) et MOx (augmentation de la teneur moyenne en plutonium) ainsi que des besoins de plus en plus importants d'entreposage de combustibles irradiés renforcent l'intérêt de la mise en œuvre d'une démarche CBU afin de gagner en marges de fonctionnement pour l'ensemble des activités de l'aval du cycle du combustible (densification des piscines, design des châteaux de transport, cadences de retraitement...) [CBU-1] [CBU-2] [CBU-3]. Notons également l'intérêt de la prise en compte d'une méthodologie CBU MOx dans le contexte de la perspective du déploiement en France de réacteurs du futur (Réacteurs à Neutrons Rapides et Réacteur à Eau Légère et à Haut Facteur de Conversion) ; et de la préservation des ressources naturelles en uranium naturel nécessitant le dimensionnement d'une nouvelle usine de retraitement spécifique.

### 3.2 Contexte industriel, statut de prise en compte du CBU et perspectives

La prise en compte du CBU peut permettre par exemple d'optimiser le dimensionnement des piscines d'entreposage, d'entreposer des assemblages initialement plus enrichis et de mettre en place de nouveaux dispositifs d'entreposage plus compacts, d'alléger les structures des châteaux de transport et/ou de pouvoir transporter plus d'assemblages usés dans un même château ainsi que, pour les opérations de retraitement, de conserver les mêmes cadences pour des combustibles d'enrichissement plus élevé ainsi que d'augmenter les valeurs de limitation de masse pour l'opération de dissolution des tronçons. De plus, l'application d'une démarche CBU pour cette opération de retraitement permettrait de ne plus faire appel à un poison soluble pour dissoudre des tronçons d'assemblages MOx. Au vue de toutes ces perspectives, le CBU a donc commencé à être considéré dans l'industrie dès les années 1980. Dans un premier temps, la mise en œuvre d'une méthodologie dite « Actinides Only » (prise en considération de la disparition des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  et de l'apparition de  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238,239,240,241,241,242}\text{Pu}$ , utilisation d'un profil de taux de combustion uniforme égal au taux de combustion des 50 cm les moins irradiés) a permis en France de démontrer la sûreté des opérations de dissolution de combustibles UOx irradié fortement enrichis (4,4 %) dans l'usine UP2-400 de AREVA-NC La Hague. Sa mise en œuvre a ensuite été étendue au transport des assemblages ainsi qu'à la conception des usines de retraitement UP3 et UP2-800 de La Hague. De nombreuses études, dont des benchmarks du groupe d'expert CBU de l'OCDE-AEN/WPNCS (Tableau 3.1) [CBU-4] et les programmes expérimentaux associés, ont été menés dans divers pays parmi lesquels on retrouve les USA, la France et le Japon (Tableau 3.2). Initialement, elles ont porté sur le combustible REP UOx puis les combustible REP MOx, suite à l'introduction du combustible MOx dans les réacteurs dans le but d'optimiser le cycle et de préserver les ressources naturelles en uranium (en France décision prise en 1985 de recycler le plutonium en réacteur) [CBU-5].

Benchmark	Application	Description	Statut
I-A	REP-UOx	Multiplication factor, spectra and reaction rates calculations for an infinite PWR fuel rod lattice with varying compositions (different enrichments, burnups, cooling-times, presence or absence of actinides - major and minor- and of fission products - major and minor-	Rapport publié en juin 1996
I-B	REP-UOx	Depletion calculations for a simple infinite PWR pin-cell lattice.	Rapport publié en janvier 1994
II-A	REP-UOx	Multiplication factor calculations of an infinite array of PWR fuel with finite axial height. The aim being to study the effect of axial burn-up profile on criticality calculations of PWR fuel storage.	Rapport publié en février 1996
II-B	REP-UOx	Multiplication factor and spatial fission distribution calculations of a realistic PWR spent fuel transport cask including accidental situations. The aim being to further study the effect of axial burn-up profile on criticality calculations	Rapport publié en mai 1998
II-C	REP-UOx	Multiplication factor and fission distribution calculations of a realistic PWR fuel transport cask. The aim being to study the sensitivity to the axial burnup shape.	Rapport publié en septembre 2008
II-D	REP-UOx	Multiplication factor and fission distribution calculations of a realistic PWR fuel transport cask. The aim being to study control rods effects on spent fuel composition.	Rapport publié en décembre 2006
II-E	REP-UOx	Study on the impact of changes in the isotopic inventory due to control rod insertions in PWR UO <sub>2</sub> fuel assemblies during irradiation on the end effect	Dernière version provisoire du rapport - mai 2013)
IV-A	REP-MOx	Reactivity Prediction Calculations for Infinite Arrays of PWR MOX Fuel Pin Cells	Rapport publié en mai 2003
IV-B	REP-MOx	Inventory MOX Fuel Depletion Calculations	Rapport publié en mai 2003
VII	REP-UOx	Study of spent fuel compositions for long-term disposal	Rapport publié en février 2012
VIII	REP	Reactivity worth of small isotopic samples (FP and actinides) in pile-oscillation experiments	Spécifications Distribuées

Tableau 3.1 – Statut des différents benchmarks réalisés par le groupe d'experts CBU OCDE/AEN

Cette introduction du combustible MOx dans les cœurs modifiant de manière significative les paramètres neutroniques (hétérogénéités locales importantes du flux à la frontière assemblage UOx-assemblage MOx), d'importants travaux d'élaboration et de validation de schémas de calcul ont donc été entrepris notamment par le CEA [CBU-5]. Le Tableau 3.2 présente pour les cas entreposage, transport et retraitement le statut comparé du CBU UOx et MOx à travers le monde [CBU-6] [CBU-7]. On y remarque immédiatement la nette prédominance de l'adoption d'une méthodologie CBU pour le combustible REP-UOx. Ceci s'explique par le fait que ce type de combustible est plus répandu que le

REP-MOx. En effet, seulement un tiers des combustibles usés sont retraités dans le monde et il existe seulement des usines de fabrication de MOx en France, Belgique et Grande-Bretagne [CBU-8].

Pays	Entreposage piscine		Transport		Retraitement	
	UOx	MOx	UOx	MOx	UOx	MOx
<b>Belgique</b>	APU-1		INT			
<b>Brésil</b>	APU-2		Nc			
<b>Chine</b>	INT		INT			
<b>France</b>	UD-2	UD-2	APU-1,UD-2	UD-1,2	APU-1	INT
<b>Allemagne</b>	APU-2	APC-2	APU-1, APU-2	APC-2		
<b>Japon</b>	INT	INT	INT	INT	APU-1	INT
<b>Corée du Sud</b>	APU-2		INT			
<b>Pays-Bas</b>	APU-2		APU-1			
<b>Slovénie</b>	APU-2		Nc			
<b>Afrique du Sud</b>	APU-2		Nc			
<b>Espagne</b>	APU-2		INT			
<b>Suède</b>	Nc		Nc			
<b>Suisse</b>	APU-2		APU-1	INT		
<b>Royaume-Uni</b>	UD-1		INT	Nc	APU-1	INT
<b>USA</b>	APU-2	UD-2	APC-1,UD-2	INT		

**Légende**

<b>APU-1</b>	Approbation et mise en oeuvre CBU « Actinides Only »
<b>APU-2</b>	Approbation et mise en oeuvre CBU « Actinides + PF »
<b>APC-1</b>	Concept approuvé « Actinides Only »
<b>APC-2</b>	Concept approuvé « Actinides + PF »
<b>UD-1</b>	Etude pour prise en compte CBU « Actinides Only »
<b>UD-2</b>	Etude pour prise en compte CBU « Actinides + PF »
<b>INT</b>	Intéressé
<b>Nc</b>	Pas considéré mais potentiellement applicable

**Tableau 3.2 – Statut comparé du CBU REP UOx et MOx (entreposage, transport, retraitement) dans le monde - mise à jour 2013**

En Allemagne, dans le cadre du licensing de l'emballage de transport TN24E (pouvant contenir jusqu'à 21 assemblages de combustibles usés UOX et MOX), AREVA-TN a proposé la mise en œuvre de la démarche de Crédit Burn-up en utilisant 6 des 15 Produits de Fission recommandés par l'OCDE, sur la base des études menées au CEA [CBU-9]. L'autorité de sûreté allemande BfS (Bundesamt für Strahlenschutz) a validé l'ensemble du dossier présenté avec un premier chargement prévu en 2014. Les Etats-Unis et l'Allemagne ont élaboré des standards pour guider les exploitants dans la prise en compte du CBU pour l'entreposage en piscine et à sec ainsi que pour le transport envisageant la prise en compte de produits de fission :

- USA : ANS 8.27 2009 : Burnup Credit for LWR fuel ;
- Allemagne : DIN 25471 et DIN 25712.

De plus, la norme française ISO 27468 intitulée « Evaluation des systèmes mettant en œuvre des combustibles REP-UOx - Approche conservative de Crédit Burn-up », reproduisant intégralement la norme internationale ISO 27468 :2011, a été homologuée le 10 août 2011 pour prendre effet le 10 septembre 2011 [CBU-10]. La prise en considération des produits de fission y est évoquée.



### 3.3 Méthodologie CBU

La prise en compte du CBU nécessite l'étude de nouveaux paramètres et effets physiques dans les études de sûreté-criticité (donc la considération de nouvelles incertitudes) et implique la mise en œuvre d'un calcul d'évolution suivi d'un calcul de criticité [CBU-11]. La chaîne de calcul dédiée au Crédit Burn-up (CBU), qui a été développée et validée au CEA en 2006 en partenariat avec AREVA-NC pour les combustibles REP-UOx afin de tenir compte de la baisse de réactivité due à l'usure du combustible dans les études de sûreté-criticité, s'appuie sur l'enchaînement d'un calcul d'évolution (formulaire DARWIN) et de criticité (formulaire CRISTAL). En vue de qualifier cette chaîne de calcul, des expériences ont été réalisées à Cadarache sur la maquette critique MINERVE, l'évaluation de la marge d'anti-réactivité étant déduite de la différence des réactivités mesurées sur des échantillons de crayons REP (UOx) neufs par rapport à celle d'échantillons de même type irradiés. Des programmes ont également été menés à Mol en Belgique (Programme REBUS) par mesure de hauteur d'eau critique sur des réseaux de crayons. La qualification de la méthodologie associée à cette chaîne de calcul (processus de comparaison des résultats du code par rapport à ceux d'expériences) est représentative de configurations industrielles réelles. Elle repose d'une part sur un important programme expérimental d'analyses isotopiques d'échantillons de combustible irradiés ainsi que de solutions obtenues par dissolution d'assemblages entiers en ce qui concerne le bilan matière en évolution (DARWIN) et d'autre part sur l'exploitation de résultats d'expériences critiques de diverses origines (IRSN, CEA mais aussi japonaises, américaines et évaluées par l'ICSBE) pour le calcul de criticité (CRISTAL). Dans le cadre de la prise en compte du CBU, les programmes spécifiques pour la prise en compte des produits de fission ont été menés dans le réacteur MINERVE, dans le cadre du programme REBUS (Belgique), du programme CERES (Royaume-Uni) et d'expériences critiques menées à Valduc par l'IRSN. Ces programmes d'intérêt seront éventuellement étudiés au cas par cas, en fonction des droits d'accès associés. La démarche CBU s'appuie a minima sur la prise en compte de la consommation des matières fissiles et la formation d'actinides (CBU dit « Actinide Only ») et éventuellement sur la prise en compte de 15 produits de fission fortement absorbants. En plus de ces hypothèses peuvent être examinées éventuellement :

- une pénalisation des conditions d'irradiation impactant le burn up ;
- une pénalisation de l'environnement impactant le burn up ;
- une pénalisation sur le profil d'irradiation, la prise en compte d'un profil plat étant une hypothèse non conservative.

Appliquer une démarche CBU implique que soit définie une méthodologie assurant le conservatisme des calculs. Les points à considérer sont listés dans le Tableau 3.3. Dans le cas REP-MOx, nous constatons l'apparition d'une problématique supplémentaire : la définition d'un vecteur Pu « enveloppe ». En effet, contrairement au cas UOx, une composition maximale en isotopes fissiles ne conduit pas obligatoirement à une valeur de réactivité enveloppe après irradiation et refroidissement. Notons l'importance de la décroissance du  $^{241}\text{Pu}$  en  $^{241}\text{Am}$  pour la réactivité du combustible MOx [CBU-12]. La proportion  $^{239}\text{Pu} / ^{241}\text{Pu}$  contenue dans le plutonium fissile initial constitue un paramètre important à prendre en considération dans l'évolution de la réactivité du combustible MOx, en raison des contributions respectives des voies de disparition du  $^{241}\text{Pu}$  sous et hors irradiation, par capture neutronique conduisant au  $^{242}\text{Pu}$  et par décroissance radioactive (période de 14.4 ans) conduisant à l' $^{241}\text{Am}$ , important absorbant [CBU-13].



REP-UOx	REP-MOx
12 actinides	16 actinides
15 PF	15 PF
Conditions conservatives d'irradiation	Conditions conservatives d'irradiation
Application de facteurs correctifs	Application de facteurs correctifs
Profil axial de BU réaliste et pénalisant (11 zones)	<i>Etudes profil TC</i>
Enrichissement enveloppe	<i>Etudes pour la détermination d'un vecteur Pu enveloppe</i>

**Tableau 3.3 – Comparaison des méthodologies de prise en compte du CBU**

Deux méthodologies ont été proposées pour la définition d'un vecteur Pu « enveloppe ».

- La méthodologie proposée par l'IRSN [CBU-14], basée sur une approche physique, consiste en un ajustement séquentiel des proportions des principaux isotopes du plutonium :  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ , pour la teneur maximale en Pu du lot de n combustibles neufs étudiés et l'enrichissement maximal en  $^{235}\text{U}$ . Cette méthode doit être appliquée de façon propre à chaque cas industriel étudié car les domaines de validité des vecteurs Pu sont variables suivant la géométrie étudiée et le type de combustible MOx considéré. A noter que l'isotopie du plutonium est traitée séparément de la teneur en plutonium bien que ces deux paramètres soient dépendants l'un de l'autre.
- Une seconde approche, proposée par AREVA-SGN [CBU-15], porte sur la modélisation de la variation de réactivité du combustible irradié par rapport au combustible neuf et consiste à établir des relations entre cette variation et les paramètres de composition du combustible. Elle repose sur la notion d'UOx (neuf ou irradié) équivalent. Pour une géométrie considérée, des coefficients traduisant le poids des isotopes de l'uranium, du plutonium et de l'américium dans la perte de réactivité de l'UOx équivalent sont déterminés grâce à des calculs de criticité mettant en jeu des combustibles UOx et MOx frais et irradiés. La validation de cette méthode est fortement dépendante du spectre neutronique (de part la gestion/fabrication du combustible).

Concernant le profil conservatif à prendre en compte, des études ont été menées par le CEA et EDF R&D. Elles ont conduit à définir des profils caractéristiques pénalisants (Figure 3.1) en fonction de l'enrichissement et du burn-up à partir des mesures de profil de taux de combustion effectuées à La Hague par AREVA sur des assemblages 900 MWe EDF. Ces profils sont obtenus par des mesures de l'activité du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{134}\text{Cs}$  par spectrométrie gamma sur les deux faces opposées de l'assemblage combustible. La base expérimentale considérée regroupe près de 200 mesures pour des taux de combustion allant de 20 à 50 GWj/t [CBU-16]. Pour un burnup donné, le profil le plus pénalisant est celui qui maximise le burnup moyen sur les 50 cm supérieurs de l'assemblage. De plus, des travaux sont actuellement menés par EDF R&D visant à vérifier la possibilité d'utiliser les mesures de flux de neutrons effectuées en cœur des CNPE (démarche inCore/exCore) [CBU-17]. Les résultats de ces études présentés lors de la réunion du Groupe de Travail Français CBU en mars 2011 et à la conférence internationale traitant de la criticité ICNC 2011 amènent aux conclusions suivantes :

- En première approche l'utilisation de mesures « InCore » n'est pas à exclure et elle est conservative par rapport aux mesures d'AREVA-NC (sur la base du retour d'expérience EDF réduit uniquement) ;
  - Plus le burnup est important, plus l'écart moyen de  $k_{\text{eff}}$  entre les mesures InCore et ExCore sera grand et dispersé ;
- Pour les combustibles MOx, peu de mesures sont en revanches disponibles.

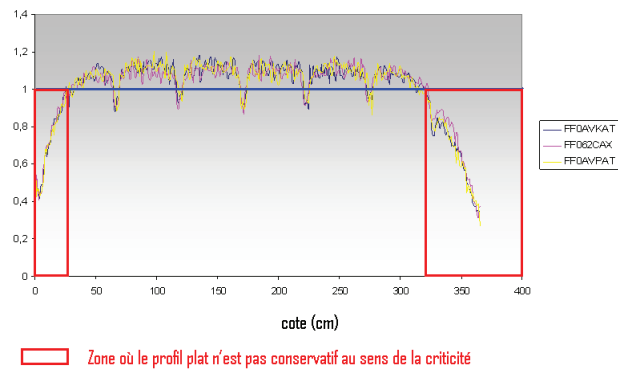


Figure 3.1 – Profil de burnup en fonction de la cote axiale de l'assemblage (mesures La Hague sur assemblage UOx EDF)

### 3.3.1 Conditions conservatives d'irradiation

Comme nous l'avons vu précédemment, l'un des points à respecter pour garantir le conservatisme des calculs, indispensable dans l'application d'une démarche CBU, est de considérer des conditions conservatives d'irradiation pour le calcul du bilan-matière. Ces conditions d'irradiation doivent couvrir les types d'irradiation les plus pénalisants. Lorsqu'elles conduisent à un durcissement du spectre, la réactivité d'un réseau d'assemblages (entreposés en piscine ou transportés) augmente. Ce durcissement peut être dû à la présence de barres absorbantes, d'un environnement MOx ou à la prise en compte de paramètres d'irradiation conservatifs [CBU-1]. Remarquons que les produits de fission les plus sensibles à ce durcissement du spectre sont le  $^{149}\text{Sm}$ , le  $^{151}\text{Sm}$  et le  $^{155}\text{Gd}$ . Ces conditions sont résumées dans le Tableau 3.4 [CBU-1] [CBU-2].

Paramètre	UOx	MOx
Température combustible	600°C	700°C
Température modérateur	325°C	330°C
Concentration bore	600 ppm	600 ppm
Puissance spécifique	40W/g	40W/g
Barres	AIC insérées durant toute l'irradiation	AIC insérées durant toute l'irradiation
Environnement assemblage	Face : 4 assemblages MOx non barrés teneur Pu moyenne 4.5% 15 GWj/t Coin : 4 assemblages UOx non barrés enrichis à 3.25% 24 GWj/t	Face : 4 assemblages MOx non barrés teneur Pu moyenne 4.5% 15 GWj/t Coin : 4 assemblages UOx non barrés enrichis à 3.25% 24 GWj/t

Tableau 3.4 – Comparaison des conditions conservatives d'irradiation (UOx : couplage DARWIN2.0-CRISTALV1, MOx : couplage CESAR5-CRISTALV1)

En italique seront données les conclusions publiées par l'AIEA en 2007 [CBU-6] suite à une réunion d'échanges techniques entre des représentants des dix-huit pays suivants : Allemagne, Arménie, Belgique, Bulgarie, Chine, Espagne, Etats-Unis, Finlande, France, Hongrie, Japon, Lituanie, République Tchèque, Royaume-Uni, Russie, Slovaquie, Suède, Ukraine.

- **Température combustible** : la température combustible recommandée pour les calculs APOLLO2 doit permettre de conserver le taux de réaction de l' $^{238}\text{U}$ . Elle est issue de calculs thermomécaniques METEOR (code développé au CEA) réalisés au point le plus chaud à partir de la température de surface et de centre pastille. Pour les REP-UOx (programme expérimental BUGEY 3) : suite aux calculs METEOR, il s'avère que la température effective combustible ne dépasse pas  $580^\circ\text{C}$ . Cette température effective est déterminée à partir de la température moyenne combustible et des températures centrale et surfacique au point le plus chaud (cote médiane) provenant de calculs METEOR comme suit [CBU-18] :

$$T_{eff} = \frac{\int_0^{R_c} T(\vec{r}) d\vec{r}}{\int_0^{R_c} d\vec{r}} - \frac{1}{18}(T_{centrale} - T_{surface}) \quad (3.1)$$

avec  $R_c$  : rayon combustible

Pour les REP-MOx (programmes expérimentaux Saint-Laurent B1 et Dampierre-HTC) : suite aux calculs METEOR, il s'avère que la température effective combustible ne dépasse pas  $670^\circ\text{C}$  pour une puissance spécifique égale à  $44 \text{ W/g}$ . De plus, des points de calcul à la cote médiane pour des crayons EDF irradiés ont conduit à la détermination d'une température effective moyenne comprise entre  $620$  et  $690^\circ\text{C}$ .

*AIEA : une valeur généralement de l'ordre de  $600^\circ\text{C}$ , aux USA de l'ordre de  $730^\circ\text{C}$ .*

- **Température modérateur** : température sortie cœur.

*AIEA : température sortie cœur*

- **Concentration en bore** : dans le cas combustible UOx comme dans le cas combustible MOx, la concentration retenue est la valeur moyenne de la concentration en bore en début de vie ( $1200 \text{ ppm}$ ) et en fin de vie ( $0 \text{ ppm}$ ). Cette valeur, déterminée en considérant une décroissance linéaire de la teneur en bore au cours du temps alors qu'en réalité la décroissance a surtout lieu durant les premiers jours d'irradiation, est donc conservative.

*AIEA : consensus sur la moyenne des concentrations en début et fin de vie (en général une valeur de  $600 \text{ ppm}$  est retenue).*

Pour les MOx, remarquons que l'étude en référence [CBU-19] a montré la sensibilité particulière de la réactivité aux trois paramètres d'irradiation suivants : température combustible, température modérateur et concentration en bore.

- **Puissance spécifique** : les études [CBU-1] [CBU-19] ont montré que la réactivité est peu sensible à la puissance spécifique lorsque celle-ci est comprise entre  $30$  et  $50 \text{ W/g}$ . Considérant un assemblage barré durant toute la durée de l'irradiation, sa puissance spécifique ne peut pas être élevée. La valeur retenue est donc la moyenne des bornes du domaine de non sensibilité de la réactivité.

*AIEA : consensus sur la faible sensibilité de la réactivité à la puissance spécifique.*

- Barres de contrôle : Le choix de 24 crayons AIC (Argent Indium Cadmium) est conforme avec la situation la plus pénalisante aussi bien pour un combustible UOx que MOx dans les réacteurs 900 MWe d'EDF. Ce choix pourra être repensé pour les 1300 MWe (ou les autres types AFA2G). Elles sont considérées comme insérées entièrement pendant toute l'irradiation.

*AIEA : hypothèse de barres insérées pendant toute l'irradiation non retenue en particulier en Allemagne et aux USA, spécificité française.*

Le durcissement du spectre neutronique dû à l'insertion des barres de contrôle provoque [CBU-20] :

- une augmentation des inventaires en  $^{235}\text{U}$  (maximum 30%),  $^{237}\text{Np}$  (maximum 25%), isotopes du plutonium (maximum 50%) due à la diminution du nombre de fissions de l' $^{235}\text{U}$  et à la production accrue de plutonium ;
  - une augmentation des inventaires en  $^{241}\text{Am}$  (maximum 45%) et  $^{243}\text{Am}$  due à l'augmentation de celui en  $^{241}\text{Pu}$  ;
  - une augmentation des inventaires en  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{155}\text{Gd}$  (maximum 100%) ;
  - une forte augmentation des rendements cumulés de fission de  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$  vers  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ .
- 
- Environnement assemblage : *AIEA : consensus sur la nécessité d'un environnement MOx pour les calculs d'évolution d'assemblages UOx.*

### 3.3.2 Choix des isotopes d'intérêt vis-à-vis de la criticité, antiréactivité associée

Les études menées dans le cadre des collaborations internationales, sous l'égide de l'Agence pour l'Energie Nucléaire (AEN), ont permis de déterminer la liste des principaux actinides et produits de fission contribuant de manière significative à l'empoisonnement du combustible irradié [CBU-21]. Parmi ceux-ci, le  $^{131}\text{Xe}$ , volatil, n'a pas été retenu, sa présence dans le combustible irradié ne pouvant être garantie. Les applications REP-UOx mais aussi REP-MOx ont été considérées dans ces travaux, permettant d'identifier une liste de nucléides recommandés par l'AEN (dont 15 produits de fission), détaillée ci-après. Outre leur caractère absorbant, leur stabilité et leur caractère non volatil ont été considérés.

#### 3.3.2.1 Actinides

Le Tableau 3.5 présente les différents actinides retenus pour la prise en compte du CBU REP-UOx et REP-MOx. Les deux isotopes contribuant particulièrement à la perte de réactivité du combustible, le  $^{240}\text{Pu}$  et l' $^{241}\text{Am}$ , sont indiqués en vert clair.

Actinide	rang	antiréactivité MOx (pcm)		rang	antiréactivité UOx (pcm)	
$^{234}\text{U}$					-120	
$^{235}\text{U}$						
$^{236}\text{U}$		-100		3	-900	
$^{238}\text{U}$						
$^{238}\text{Pu}$	5	-1100		6	-310	
$^{239}\text{Pu}$						
$^{240}\text{Pu}$	1	-13000		1	-8300	
$^{241}\text{Pu}$						
$^{242}\text{Pu}$	4	-1500		4	-710	
$^{241}\text{Am}$	2	-3400		2	-1290	
$^{242\text{m}}\text{Am}$		500			27	
$^{243}\text{Am}$	3	-1900		7	-280	
$^{242}\text{Cm}$		négligé	} 500		négligé	} -30
$^{243}\text{Cm}$					négligé	
$^{244}\text{Cm}$					négligé	
$^{245}\text{Cm}$					négligé	
$^{246}\text{Cm}$		négligé			négligé	
$^{237}\text{Np}$		peut être négligé		5	-620	

Tableau 3.5 – Actinides et effet en réactivité associé, BU = 40 GWj/t, TR = 5 ans

Il apparaît immédiatement que les deux différences principales entre ces deux sélections d'actinides sont les suivantes (isotopes indiqués en vert foncé dans le tableau) [CBU-22] :

- la réactivité positive introduite par l' $^{242\text{m}}\text{Am}$  n'est plus négligeable dans le cas d'un combustible MOx contrairement au cas UOx.
- la prise en considération des isotopes 243, 244 et 245 du Curium dans le cas REP-MOx. En effet, ceux-ci sont présents en plus grandes quantités dans le MOx que dans l'UOx (en particulier les isotopes fissiles  $^{243}\text{Cm}$  et  $^{245}\text{Cm}$  de sections de fission respectives  $\sigma_f$  (2200 m/s) = 500 barns et 2130 barns) et leur influence sur la réactivité ne peut plus être négligée. Cependant, du fait de la faible antiréactivité introduite par les isotopes  $^{242}\text{Cm}$  et  $^{246}\text{Cm}$ , ceux-ci seront négligés.

On constate également que :

- Dans les deux situations, tous les isotopes de l'uranium sont pris en compte. Cependant, l' $^{236}\text{U}$  devient un absorbant moins important dans le cas d'un combustible MOx car il est présent à l'état de traces dans l'uranium appauvri.
- tout comme dans l'UOx irradié, l'antiréactivité du  $^{240}\text{Pu}$  est prépondérante dans le MOx irradié dans lequel son bilan-matière dépend en premier lieu de sa teneur initiale [CBU-13] ;
- les principaux isotopes du Pu (238, 239, 240, 241, 242) ainsi que les isotopes 241 et 243 de l'américium sont considérés dans les deux cas ;
- pour des temps de refroidissement courts, le  $^{237}\text{Np}$  peut être négligé dans le cas MOx.

### 3.3.2.2 Produits de fission

Aussi bien dans le cas UOx que MOx, les quinze mêmes produits de fission sont sélectionnés [CBU-23] et représentent 80% de l'antiréactivité totale apportée par l'ensemble des produits de fission, cependant, leur importance relative est très différente comme l'indique le Tableau 3.6 [CBU-22] du fait du durcissement du spectre induit par la présence du plutonium dans le MOx. Suivant l'origine des fissions ( $^{235}\text{U}$  pour l'UOx et  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$  pour le MOx), les rendements de fission sont différents.

Produit de fission	rang	antiréactivité MOx (pcm)	rang	antiréactivité UOx (pcm)
$^{103}\text{Rh}$	1	-1800	2	-1380
$^{149}\text{Sm}$	2	-1490	3	-1300
$^{155}\text{Gd}$	3	-1110	1	-1500
$^{151}\text{Sm}$	4	-830	6	-640
$^{143}\text{Nd}$	5	-690	4	-1100
$^{133}\text{Cs}$	6	-680	5	-780
$^{109}\text{Ag}$	7	-540	13	-260
$^{152}\text{Sm}$	8	-480	7	-540
$^{153}\text{Eu}$	9	-450	10	-390
$^{99}\text{Tc}$	10	-440	8	-470
$^{145}\text{Nd}$	11	-280	9	-420
$^{101}\text{Ru}$	12	-230	14	-230
$^{147}\text{Sm}$	13	-210	14	-230
$^{95}\text{Mo}$	14	-200	11	-290
$^{150}\text{Sm}$	15	-190	12	-270
<b>Total</b>		<b>-9620</b>		<b>-9800</b>

Tableau 3.6 – Produits de fission et effet en réactivité associé, BU = 40 GWj/t, TR = 5 ans

- Le rang du  $^{149}\text{Sm}$  est plus élevé dans le cas du REP-MOx car sa concentration est deux fois plus élevée que dans un combustible REP-UOx.
- La moindre contribution du  $^{143}\text{Nd}$  à l'antiréactivité dans le cas MOx est une conséquence directe de la modification du spectre et en particulier de son faible bilan matière dans le domaine thermique. Concernant le  $^{155}\text{Gd}$ , cet écart est lié à la baisse de sa capture dans un spectre durci.
- Dans le cas MOx, les rendements de  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{143}\text{Nd}$  et  $^{145}\text{Nd}$  sont réduits d'où un empoisonnement moins important dû à leur présence. En revanche, les rendements cumulés de  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{153}\text{Eu}$  et  $^{155}\text{Eu}$  sont plus élevés de par les fissions du  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ . De ce fait, la contribution du  $^{103}\text{Rh}$ , de l' $^{109}\text{Ag}$  et de l' $^{153}\text{Eu}$  à l'antiréactivité est fortement augmentée.

Notons cependant que le temps de refroidissement influe sur la concentration du  $^{155}\text{Gd}$  dans le combustible irradié du fait de la décroissance de l' $^{155}\text{Eu}$  (T = 5 ans) et que le  $^{149}\text{Sm}$  a plus d'impact à faible

taux de combustion du fait de sa mise à l'équilibre rapide au cours de l'évolution.

### 3.3.2.3 Composantes actinides et produits de fission comparées UOx/MOx

Le CBU des assemblages MOx diffère de celui des assemblages UOx en particulier du fait que la composante « actinides » y est deux à trois fois moins importante [CBU-11] que pour ces derniers comme le montre le Tableau 3.7. Cette moindre importance du CBU « actinides » pour le cas MOx s'explique par le fait de sa forte teneur en  $^{240}\text{Pu}$  qui conduit à une amélioration du facteur de conversion sous irradiation [CBU-11].

	UOx	MOx
CBU Actinides	19000 pcm	7550 pcm
CBU PF	8400 pcm	8330 pcm
<b>CBU Total</b>	<b>27400 pcm</b>	<b>15880 pcm</b>

**Tableau 3.7 – Valeurs comparatives CBU UOx et MOx, BU=40 GWj/t, TR=1 an**

On constate, outre le fait de l'infériorité de la marge CBU des combustibles REP-MOx, l'importance de l'antiréactivité apportée par les produits de fission, composante plus importante que celle des actinides. De ce fait, l'évaluation des biais de calcul liés au bilan-matière et à l'antiréactivité des produits de fission apparaît être un point clé dans la définition d'une méthodologie CBU applicable aux combustibles REP-MOx. C'est à l'évaluation de ces biais que s'attacheront en priorité ces travaux en se basant sur les importants programmes expérimentaux intéressant la problématique CBU menés au CEA en collaboration avec AREVA-NC. Parmi ces programmes, deux présentent dans cette optique un intérêt particulier [CBU-24] :

- les analyses d'actinides et de produits de fission de tronçons de combustible REP-MOx irradié menées afin de qualifier l'inventaire combustible ;
- les mesures de réactivité réalisées par la méthode d'oscillation dans le réacteur MINERVE sur deux classes d'échantillons :
- produits de fission séparés pour la qualification de leur antiréactivité. Quinze produits de fission ont été retenus :  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{150}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  et  $^{101}\text{Ru}$  [CBU-11] (stables, non volatils et les plus absorbants), représentant 80% de l'antiréactivité totale apportée par les produits de fission dans un combustible irradié en REP, quel que soit le taux de combustion ;
- combustible irradié provenant de tronçons de combustible REP-MOx pour la qualification de la perte de réactivité au cours du cycle.

## 3.4 Conclusion

Le contexte de ces travaux est celui de l'augmentation des volumes de combustible MOx à recycler et de l'augmentation de la teneur en plutonium de ceux-ci liée au mode de gestion du parc électro-nucléaire français. Des besoins concernant la mise en œuvre du CBU ont été en particulier mis en évidence pour les problématiques piscines réacteur et transport. Outre la France (CEA, IRSN, EDF, AREVA participant au Groupe de Travail Français CBU), l'Allemagne, les Etats-Unis (ORNL), le Japon (JAEA, JAERI) le Royaume-Uni et la Suisse (PSI) s'intéressent à cette problématique de prise en compte du CBU REP-MOx dans le cadre d'applications entreposage, transport et retraitement. Ainsi, l'intérêt pour le CBU des combustibles REP-MOx se traduit notamment par des publications aux



conférences internationales ICNC, PHYSOR et GLOBAL. La problématique fait aussi l'objet de travaux, notamment de benchmarks, dans un cadre international au sein de l'AIEA (Nuclear Fuel Cycle and Materials Section) et de l'OCDE/AEN (WPNCs Expert Group on Burn-up Credit Criticality Safety). Dans le cadre des applications de cette méthode d'amélioration des études de sûreté-criticité aux combustibles REP UOx et MOx, un consensus entre les différents organismes d'étude apparaît sur la méthodologie à mettre en œuvre dans le but de mener des calculs conservatifs et identifie les points suivants :

- prise en compte d'actinides et de produits de fission non-gazeux et stables recommandés par l'OCDE ;
- hypothèses conservatives pour le calcul d'évolution : température combustible, température modérateur, puissance spécifique, concentration en bore, environnement de l'assemblage, insertion des barres de commande durant l'irradiation ;
- application de facteurs de pénalité (facteurs correctifs isotopiques) permettant d'assurer le conservatisme des calculs vis-à-vis des biais et des incertitudes liés aux codes ;
- prise en compte d'un enrichissement enveloppe (cas REP-UOx)/vecteur plutonium enveloppe (cas REP-MOx) ;
- considération d'un profil axial de burn-up réaliste et pénalisant.

Le gain apporté par la prise en compte d'un CBU total considérant les actinides et produits de fission par rapport à une méthode pénalisante ne prenant pas en compte l'irradiation des combustibles est inférieur dans le cas REP-MOx à celui des combustibles REP-UOx (27400 pcm contre 15900 pcm pour un taux de combustion de 40 GWj/t et un refroidissement d'un an) et est apporté en majorité par les produits de fission (8400 pcm dans les mêmes conditions). Ceux-ci revêtent donc une importance toute particulière pour la prise en compte du CBU REP-MOx. De par leur intérêt vis-à-vis de la criticité des installations (stockage, dissolvant) les isotopes suivants ont été recommandés par l'OCDE :

- Actinides :  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{243}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{245}\text{Cm}$  ;
- Produits de fission :  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{150}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ .

Les premiers travaux menés dans le cadre de l'établissement d'une telle méthodologie adaptée aux combustibles MOx pour l'application « entreposage en piscine » ont conduit à évaluer l'impact de la restriction à ces isotopes sélectionnés de 700 à 2000 pcm environ soit 15 à 25% du conservatisme total. Des études de sensibilité concernant les paramètres d'irradiation ont été réalisées et ont montré l'impact prédominant de l'insertion totale des barres de contrôle durant toute la durée de l'irradiation soit 50% de la pénalité totale pour des taux de combustion de 30 et 40 GWj/t. Cette hypothèse, peu réaliste, est très pénalisante. La problématique du CBU REP-MOx conduit à revoir de manière approfondie les hypothèses conservatives concernant la composition initiale de l'oxyde U-Pu, complexifiée par la multiplicité des paramètres (teneur en plutonium, isotopie du plutonium) et par la dépendance de la réactivité à l'historique d'irradiation (taux de combustion, temps de refroidissement) et de la composition isotopique de manière conjointe. Le CEA a proposé dans une étude spécifique de définir un vecteur plutonium enveloppe sur la base de données industrielles, en reprenant une méthode étudiée par l'IRSN. Les conservatismes associés dépendent du niveau de connaissance a priori de la nature du combustible MOx considéré (gestion, teneur plutonium).

Concernant la prise en compte d'un profil de burn-up conservatif, des études ont été menées par le CEA et EDF R&D et ont conduit à définir des profils caractéristiques pénalisants en fonction de l'enrichissement et du burn-up sur la base de près de 200 mesures de profil de taux de combustion effectuées à La Hague par AREVA sur des assemblages REP-UOx irradiés en 900 MWe EDF. De plus, des travaux en cours à EDF R&D conduisant à l'élaboration de profils issus de données cœurs comparés à des résultats de mesure effectuées à l'usine de La Hague pour des combustibles UOx ont été présentés au Groupe de Travail Français CBU en mars 2011 et ont fait l'objet d'une publication à

la conférence internationale traitant des problématiques de criticité ICNC 2011.

## Etat de l'art de la méthodologie et des hypothèses retenues pour le calcul du CBU : bibliographie

- [CBU-1] A. BARREAU ET AL., *Recent advances in French Validation Program and Derivation of the Acceptance Criteria for UOx fuel*, IAEA TEC-DOC 1547, London, UK, 29 August, 27 September, 2005
- [CBU-2] C. RIFFARD, A. BARREAU, Communication CEA, 2009
- [CBU-3] C. RIFFARD, Communication CEA, 2009
- [CBU-4] [www.oecd-neo.org/science/wpncs/buc/](http://www.oecd-neo.org/science/wpncs/buc/)
- [CBU-5] C. CHABERT, A. SANTAMARINA, P. BIOUX, *Elaboration and experimental validation of the APOLLO2 depletion transport route for PWR Pu recycling*, Proceedings of Int Conf PHYSOR 2000, Pittsburg, Pennsylvania, USA, May, 2000
- [CBU-6] *Advances in applications of Burn-up Credit to enhance spent fuel transportation, storage, reprocessing and disposition*, IAEA TEC-DOC 1547, London, UK, 29 August, 27 September, 2005
- [CBU-7] *Advances in applications of Burn-up Credit to enhance spent fuel transportation, storage, reprocessing and disposition*, IAEA TEC-DOC 1241, Vienna, Austria, 10-14 July, 2000
- [CBU-8] *Le combustible MOx pour les centrales nucléaires*, Forum nucléaire Suisse, Feuille d'information, Août 2002
- [CBU-9] L. SAN FELICE, A. SANTAMARINA, C. RIFFARD, F. RIOU, M. LEIN, M. TARDY, *BUC implementation for a transport cask application using penalty terms from French experiments*, Proceedings of Int Conf GLOBAL2009, Paris, France, September 6-11, 2009
- [CBU-10] NF ISO 27468, *Evaluation des Systèmes mettant en œuvre des combustibles REP-UOx - Approche conservative de Crédit Burn-up*, AFNOR 2011
- [CBU-11] A. SANTAMARINA, *Burnup credit implementation in spent fuel management*, FJSS'98, CEA, Cadarache, France, August 17-26, 1998
- [CBU-12] C. RIFFARD, M. KHALFOUN, Communication CEA, 2010
- [CBU-13] A. BARREAU, Communication CEA, 2007
- [CBU-14] J. RABY, C. LAVARENNE, F. JEAN, *Bounding plutonium vectors for PWR-MOx Burn-up Credit applications*, Proceedings of Int Conf ICNC, St Petersburg, Russia, May 28 – June 1, 2007
- [CBU-15] F. GEVAERT, G. CAPLIN, A. MARC, E. GUILLOU, *Methodology to determine a bounding isotopic MOx composition for a given MOx irradiated fuel population*, Proceedings of Int Conf ICNC, St Petersburg, Russia, May 28 – June 1, 2007
- [CBU-16] C. RIFFARD, A. SANTAMARINA, J.F THRO, F. LAVAUD, *Recommended bounding axial profiles from actual burnup measurement of French PWR assemblies*, Proc. of IAEA/CSN 2009, Cordoba, Spain, October 2009
- [CBU-17] A. BONNE, D. LECARPENTIER, F. LAVAUD, J.F THRO, *Assessment of BUC Methodology integrating PWR In-Core flux measurement*, Proceedings of Int Conf ICNC 2011, Edinburgh, UK, 19-22 September, 2011
- [CBU-18] C. CHABERT, A. SANTAMARINA, Communication CEA, 1999
- [CBU-19] A. BARREAU, *Etude de sensibilité des paramètres d'irradiation pour la prise en compte du CBU dans les réacteurs REP-MOx*, NT-SRPR/LECy- 06-301
- [CBU-20] A. BARREAU, *PWR-UO2 assembly study of control rod effects on spent fuel composition, Burnup Credit Criticality Benchmark phase II-D*, OECD/NEA, 2006
- [CBU-21] B. ROQUE, A. SANTAMARINA, *Burnup credit in LWR-MOx assemblies*, Proc. of Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety (ICNC'95), Albuquerque, New Mexico, USA, September 17-21 (1995)
- [CBU-22] B. ROQUE, A. SANTAMARINA, N. THIOLLAY, *Burnup credit calculation route for PWR-MOx assemblies and experimental validation in MINERVE RIMOX et SLB1 PIE*, Proceedings of Int Conf ICNC, Versailles, France, 1999

- [CBU-23] R.L BOWDEN, P.R THORNE, *Reactivity prediction calculation for infinite arrays of PWR-MOx fuel pin cells*, Burnup Credit Criticality Benchmark, phase IV-A, OECD-NEA, 2003
- [CBU-24] J.P HUDELOT ET AL. ,Communication CEA, 1998

## Chapitre 4

# CONSERVATISME DU BILAN MATIERE EN EVOLUTION

*Ce chapitre, consacré à l'évaluation du conservatisme du bilan matière en évolution, débutera par l'analyse de l'évolution des concentrations des différents isotopes retenus dans le cadre des applications CBU REP-MOx. La méthodologie appliquée pour définir des facteurs correctifs isotopiques, basée sur la qualification du formulaire d'évolution DARWIN-2.3 à différentes valeurs de taux de combustion représentatives des applications Crédit Burn-up, sera ensuite décrite. Pour chaque isotope retenu dans le cadre du CBU REP-MOx, les écarts calcul-expérience obtenus et la tendance linéaire associée seront discutés. Un tableau de synthèse présentera la tendance de ces écarts en fonction du taux de combustion ainsi que le biais pénalisé des incertitudes technologiques associé. Du fait de la disponibilité d'une seule mesure de bilan matière fiable pour chacun des produits de fission métalliques ( $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ), ceux-ci feront l'objet d'une analyse particulière de leurs données nucléaires présentée au paragraphe 4.1 afin de pouvoir également corriger une éventuelle surestimation de leurs concentrations.*

### 4.1 Etude de l'évolution des biais de l'inventaire des isotopes du CBU

Avant de nous intéresser à l'évaluation des biais de calcul sur le bilan-matière proprement dit, analysons tout d'abord l'évolution des concentrations des isotopes retenus dans le cadre du CBU REP-MOx au cours de l'irradiation et en fonction du temps de refroidissement. Les résultats présentés, issus de calculs DARWIN-2.3, concernent le crayon E09 appartenant à la zone centrale d'un assemblage MOx (teneur initiale en plutonium 6,7%) irradié jusqu'à 50 GWj/t dans le réacteur Dampierre 2. Le choix d'un crayon appartenant à la zone centrale est motivé par l'obtention d'un bilan matière le plus précis possible, issu d'un calcul s'affranchissant des incertitudes liées à la modélisation de son environnement.

Les principales chaînes de filiation sont rappelées en **Annexe A**.

Nous constatons (Figure 4.1) la consommation progressive de l' $^{235}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Pu}$  (principal isotope fissile d'un combustible MOx). La concentration en  $^{234}\text{U}$  augmente lentement, cet isotope provenant majoritairement d'une décroissance  $\alpha$  du  $^{238}\text{Pu}$ , soit directe, soit consécutive à une décroissance  $\alpha$  du  $^{242}\text{Cm}$ . L' $^{236}\text{U}$ , produit essentiellement par capture sur l' $^{235}\text{U}$ , voit son bilan-matière augmenter au cours de l'irradiation. Concernant les autres isotopes du plutonium, la concentration en  $^{238}\text{Pu}$ , produit par décroissance  $\alpha$  du  $^{242}\text{Cm}$ , lui même produit par capture sur le  $^{241}\text{Am}$ , augmente légèrement au cours de l'irradiation. Le  $^{240}\text{Pu}$  est produit par capture sur le  $^{239}\text{Pu}$  et disparaît par capture, ce qui

explique l'évolution de sa concentration en fonction du burn-up. L'évolution de la concentration en  $^{241}\text{Pu}$  suit cette tendance car le  $^{241}\text{Pu}$  est produit essentiellement par capture sur le  $^{240}\text{Pu}$  et disparaît par capture, fission et décroissance  $\beta^-$ . Le bilan-matière du  $^{242}\text{Pu}$ , formé principalement par capture (n, $\gamma$ ) sur le  $^{241}\text{Pu}$ , augmente tout au long de l'irradiation. Cet isotope disparaît principalement par capture pour donner le  $^{243}\text{Pu}$ .

Poursuivons avec les actinides mineurs. La concentration en  $^{241}\text{Am}$  diminue plus au cours de l'irradiation par capture radiative qu'elle n'augmente par capture sur le  $^{241}\text{Pu}$  puis décroissance  $\beta^-$  ( $T=14,4$  ans) et décroissance  $\alpha$  du  $^{242}\text{Cm}$ . Dans un combustible REP-MOx, l' $^{242\text{m}}\text{Am}$  est issu de captures radiatives sur l' $^{241}\text{Am}$  et disparaît principalement par capture, fission et transition isomérique pour donner l' $^{242}\text{Am}$ , d'où la légère augmentation puis diminution de sa concentration sous irradiation. Enfin, le  $^{243}\text{Am}$  voit sa concentration augmenter au long de l'irradiation car il est majoritairement produit par décroissance  $\beta^-$  du  $^{243}\text{Pu}$  et capture et décroissance du  $^{242}\text{Pu}$ . Cette production l'emporte sur sa disparition par capture et décroissance  $\alpha$ . Le  $^{237}\text{Np}$  se forme en majorité par décroissance  $\beta^-$  de l' $^{237}\text{U}$ , provenant lui-même de la réaction (n,2n) sur l' $^{238}\text{U}$  (contribution de près de 70 %) ou de captures successives sur l' $^{235}\text{U}$  et l' $^{236}\text{U}$  (pour près de 20 %) et s'accumule tout au long de l'irradiation.

Enfin, concernant les isotopes du curium, nous pouvons remarquer Figure 4.1 que :

- La concentration en  $^{243}\text{Cm}$ , formé par capture sur le  $^{242}\text{Cm}$ , augmente puis diminue légèrement, disparaissant par capture et fission.
- Le  $^{244}\text{Cm}$ , contribuant majoritairement à l'émission neutronique et à l'activité d'un combustible MOx irradié pour des temps de refroidissement inférieurs à 100 ans, provient majoritairement de la décroissance de l' $^{244\text{m}}\text{Am}$  ( $T= 26$  minutes) formé par capture sur l' $^{243}\text{Am}$ , issu de la décroissance  $\beta^-$  du  $^{243}\text{Pu}$ . La concentration en  $^{243}\text{Am}$  augmentant tout au long de l'irradiation, il en est de même pour celle du  $^{244}\text{Cm}$ . Cette production l'emporte donc sur sa disparition par capture et décroissance  $\alpha$ .
- Le Curium 245, formé à 99% par le  $^{244}\text{Cm}$  suit cette précédente tendance, sa formation l'emportant sur sa disparition par fission et capture.



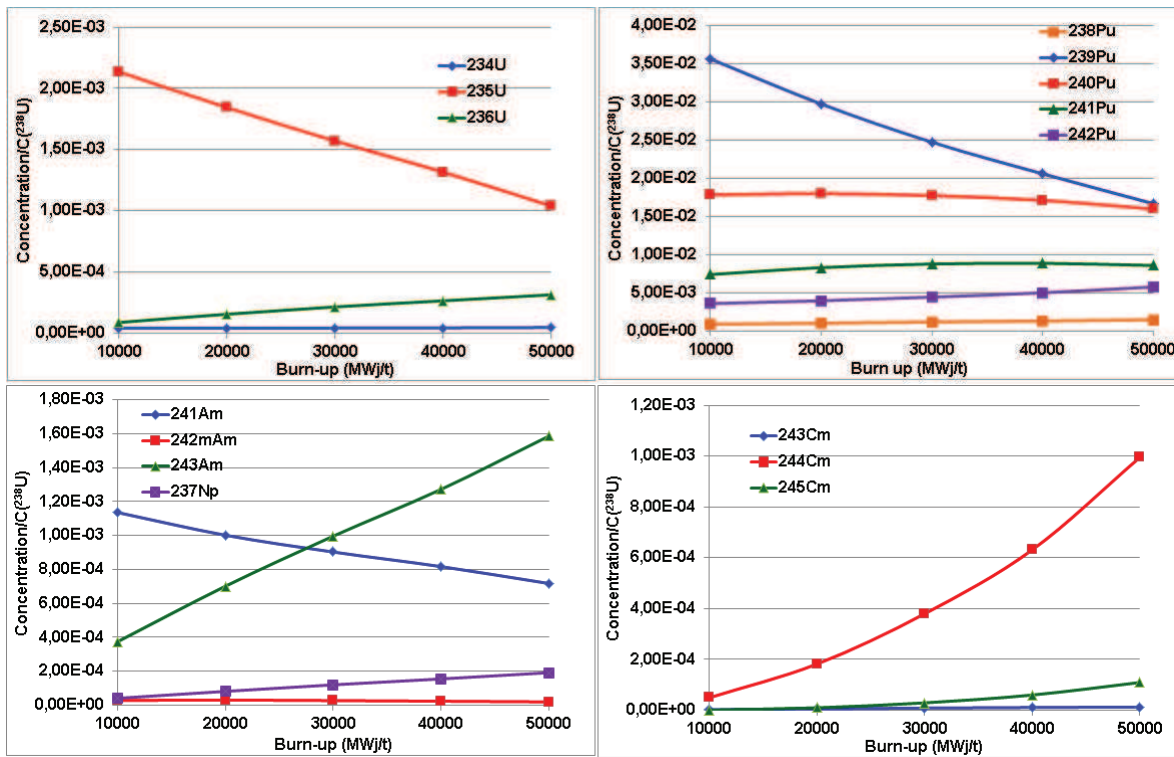


Figure 4.1 – Evolution des concentrations des seize actinides du CBU REP-MOx au cours des quatre cycles d'irradiation dans le crayon central E09 Dampierre 2, TR=0

La concentration en  $^{238}\text{U}$ , non tracée sur la Figure 4.1, est, quant à elle, relativement stable. Concernant les produits de fission, nous pouvons faire les remarques suivantes d'après la Figure 4.2 :

- La concentration en  $^{149}\text{Sm}$ , produit majoritairement par décroissance  $\beta^-$  du  $^{149}\text{Pm}$ , augmente dans une première phase, se stabilise puis décroît légèrement en fin de cycle. En effet, le  $^{149}\text{Sm}$  est stable et sa seule voie de disparition est la capture neutronique, ce qui explique qu'à partir d'un certain burn-up, sa concentration diminue. L'équilibre atteint traduit donc qu'il y a autant de captures que de désintégrations du  $^{149}\text{Pm}$  ;
- La même tendance est également observée pour le  $^{151}\text{Sm}$ , isotope également sensible au burn-up. Le  $^{151}\text{Sm}$  se forme surtout par capture du  $^{150}\text{Sm}$ , peu par fission (faibles rendements de fission produisant cet isotope) et par décroissance  $\beta^-$  du  $^{151}\text{Pm}$ . A faible burn-up, celui-ci est majoritairement produit par la décroissance du  $^{151}\text{Pm}$  alors qu'à fort taux de combustion, la capture du  $^{150}\text{Sm}$  devient prépondérante (une perturbation de +10% de la section de capture du  $^{150}\text{Sm}$  réalisée avec DARWIN-2.3 conduit à un écart relatif de 0,02% sur la concentration en  $^{151}\text{Sm}$  pour un BU de 2000 MWj/t contre 2,8% pour un BU de 52 GWj/t). La mise à l'équilibre de sa concentration est plus tardive que celle du  $^{149}\text{Sm}$ .
- Pour les autres isotopes, leur concentration croît de manière quasi linéaire tout au long de l'irradiation.

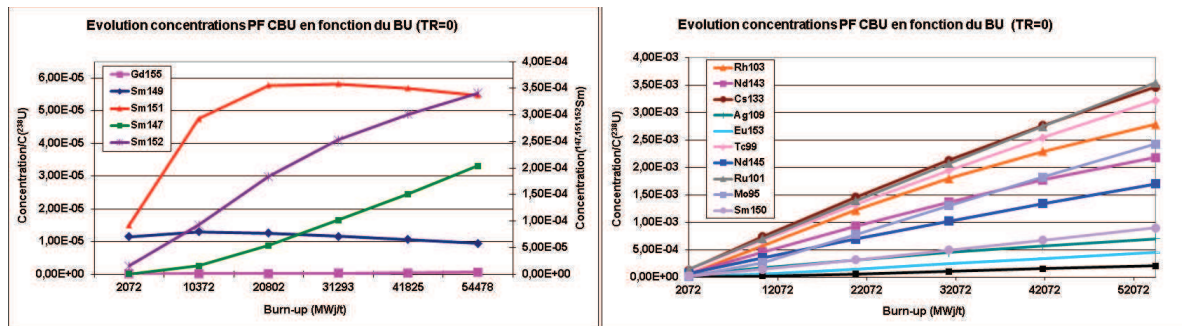


Figure 4.2 – Evolution des concentrations des 15 PF du CBU REP-MOx au cours des quatre cycles d'irradiation dans le crayon central E09 Dampierre 2, TR=0

La Figure 4.3 illustre le phénomène dit d'« Américiation » se produisant au cours du refroidissement du combustible. Plus le temps de refroidissement de celui-ci augmente, plus la quantité de  $^{241}\text{Am}$ , absorbant neutronique, dans le combustible est importante, et ce particulièrement à partir de 10 ans de refroidissement. En effet, le  $^{241}\text{Pu}$  possède une période de 14,4 ans, sa décroissance par réaction  $\beta$ -explique donc cette augmentation.

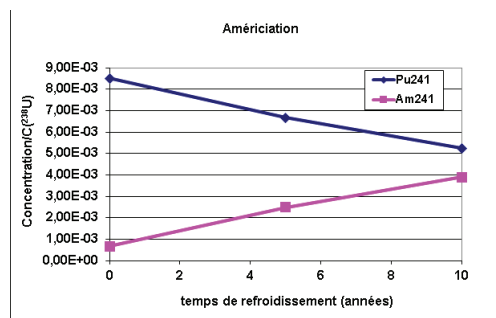


Figure 4.3 – Evolution conjointe des concentrations en  $^{241}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  en fonction du temps de refroidissement - « Américiation »

L'ensemble des concentrations des produits de fission choisis restent stables au cours du refroidissement puisqu'ils sont stables, hormis celle du  $^{155}\text{Gd}$  qui augmente au cours du refroidissement car il est produit par décroissance  $\beta$ - du  $^{155}\text{Eu}$  de période  $T=5$ ans comme le montre la Figure 4.4.

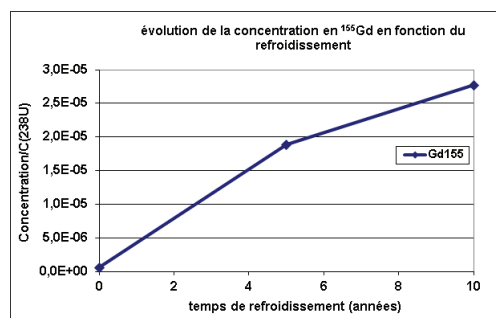


Figure 4.4 – Evolution de la concentration en  $^{155}\text{Gd}$  en fonction du temps de refroidissement

## 4.2 Méthode de détermination du biais pénalisé et des facteurs correctifs associés au bilan-matière

Lorsque l'irradiation du combustible est considérée, le bilan matière des isotopes associés est calculé par le formulaire d'évolution DARWIN2.3. Les concentrations ainsi déterminées sont ensuite utilisées pour effectuer le calcul de criticité de la configuration d'intérêt. Afin de garantir le conservatisme de ce bilan-matière et de corriger d'une part une éventuelle surestimation des concentrations des isotopes fissiles et d'autre part une éventuelle sous-estimation des concentrations des isotopes absorbants, des facteurs correctifs leur sont appliqués en amont du calcul de criticité. La détermination de ces facteurs correctifs est basée sur la qualification (comparaison des résultats de bilan-matière provenant des calculs d'évolution avec des résultats expérimentaux) du produit DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4. Les résultats expérimentaux utilisés pour cette qualification sont issus d'analyses isotopiques et élémentaires de solutions obtenues après découpe et dissolution de petits tronçons de combustibles irradiés (mesures de teneur et d'abondance isotopique utilisant des techniques de spectrométrie de masse). L'écart Calcul-Expérience conservatif retenu pour la détermination de facteurs correctifs est alors obtenu de la manière suivante [BM-1] [BM-2] :

- l'écart C/E est lissé en fonction du taux de combustion du combustible. De façon à tenir compte de l'incertitude expérimentale (incertitude de mesures et incertitudes « technologiques ») associée aux C/E, la droite de tendance est obtenue avec Scilab par la méthode des moindres carrés pondérés (pondération par l'incertitude associée à chaque valeur de C/E) [BM-3] ;
- cette loi d'erreur en fonction du burn-up est pénalisée de la tendance de l'incertitude expérimentale totale (somme quadratique des différentes contributions propagées dans les calculs d'évolution) à  $1,65 \sigma$  en fonction du burn-up (en effet, on peut écrire  $F(1,65) = 0,95$  avec F la fonction de répartition de la loi normale). Cette incertitude est obtenue à partir des coefficients de sensibilité de la concentration de l'isotope aux différents paramètres sensibles pour un crayon représentatif choisi (ici le crayon central E09). Cette démarche permet de maximiser l'incertitude expérimentale car l'importante réduction de sa composante aléatoire due au lissage des C/E est négligée.
- pour tous les isotopes, excepté les actinides pour lesquels la réactivité est sensible à leur concentration, on retient un C/E unique (dans le but de faciliter la mise en œuvre de la méthodologie CBU) correspondant à la valeur maximum de  $\Delta = [(C - E)/E \pm 1.65\sigma]$  sur la plage de burn-up. Le facteur correctif associé est alors obtenu comme suit :  $FC = 1/(1 + \Delta)$ .

Notons que les écarts calcul-expérience fournis dans le dossier de qualification de DARWIN-2.3 sont relatifs au rapport de concentration atomique de l'isotope considéré et de l' $^{238}\text{U}$ , unité directement fournie par la spectrométrie de masse.

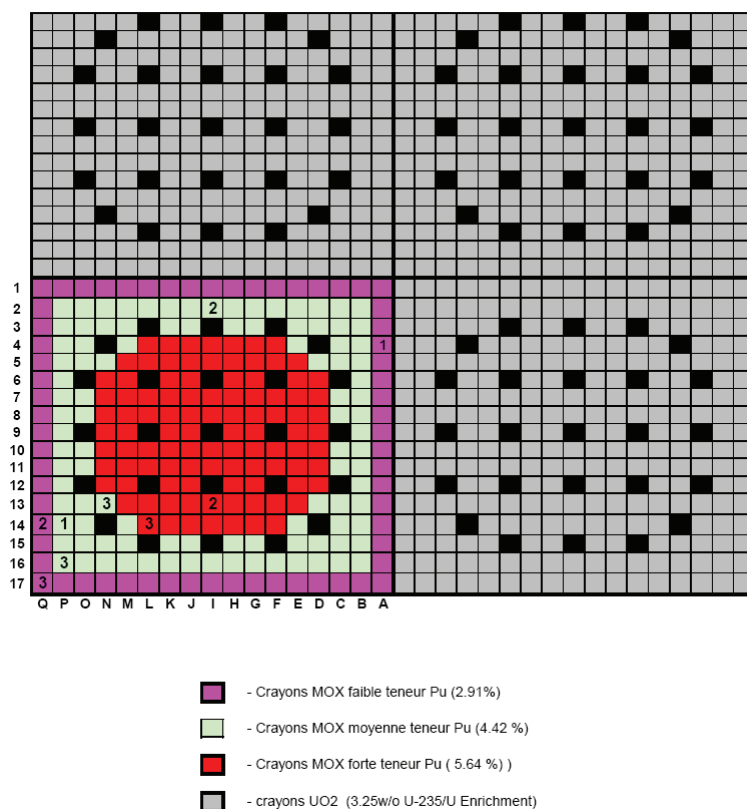
### 4.2.1 Base expérimentale de qualification DARWIN-2.3 pour les combustibles REP-MOX

Dans le cadre de l'étude de combustibles REP-MOX, on s'intéresse à l'interprétation des analyses de combustibles MOX issus du réacteur Saint-Laurent B1, correspondant à une teneur moyenne en plutonium de 4.5% et couvrant des taux de combustion allant de 10 à 45 GWj/t, ainsi qu'à l'interprétation des analyses de combustibles irradiés MOX issus de l'expérience DAMPIERRE 2 (teneur Pu 5.3% pour les crayons situés en zone intermédiaire et 6.7% pour les crayons de la zone centrale, TC de 10 à 60 GWj/t). Les échantillons analysés sont obtenus par découpe des crayons extraits. Pour tous les crayons, on sélectionne au moins un échantillon dans le plan médian (cote = 1900 mm par rapport au bas de la colonne fissile), et on peut y ajouter des tronçons répartis axialement (cotes 900 et 3000 mm). Dans le cadre des études de qualification présentées ici, nous n'avons retenu que les tronçons prélevés à la cote médiane 1900 mm. Saint-Laurent B1 et DAMPIERRE-2 sont deux tranches REP 17 X 17 de

900 MWe exploitées par EDF. Les combustibles étudiés ainsi que leurs conditions d'irradiation sont présentés ci-après.

### Saint-Laurent B1

Un tiers des assemblages du cœur sont des assemblages MOx, soit 48 sur 157. Les assemblages MOX standards, utilisés dans le réacteur Saint-Laurent B1, comportent trois zones de teneurs en plutonium différentes, de teneurs décroissantes du centre de l'assemblage vers sa périphérie, afin d'éviter les pics de puissance à l'interface UOx/MOX. La Figure 4.5 représente l'assemblage MOX entouré d'assemblages UOx et identifie les positions occupées par les crayons extraits pour analyses chimiques et interprétés [BM-4].



**Figure 4.5 – Positionnement des crayons analysés après irradiation dans Saint-Laurent B1**

Le numéro attribué aux crayons indique le nombre de cycle qu'ils ont subi<sup>1</sup>. Les crayons ont été extraits des deux assemblages FFP00JJX et FFP00HJX, occupant des positions symétriques dans le cœur. Les crayons issus de l'assemblage FFP00JJX ont été extraits après 1 cycle, ceux provenant de FFP00HJX après deux et trois cycles. Les pastilles d'UO<sub>2</sub>-PUO<sub>2</sub> contenues dans les crayons de ces deux assemblages appartiennent aux trois mêmes lots de fabrication. Leurs compositions, pour le combustible MOX vierge<sup>2</sup>, sont fournies dans le Tableau 4.1 (à la date de référence du 31/07/1987). Le Tableau 4.2 fournit les durées des cycles SLB1 et les taux de combustion moyens au déchargement.

1. Il s'agit d'une représentation car les crayons analysés ont été extraits de deux assemblages distincts.

2. Pour les calculs, ces compositions ont été modifiées pour prendre en compte la décroissance du plutonium 241 en américium 241 jusqu'à la date de début d'irradiation du combustible.

	Crayons Pu01	Crayons Pu02	Crayons Pu03
Zone assemblage	Périphérique	Intermédiaire	Centrale
Teneur Pu Pu+Am/U+Pu+Am (masse %)	2.91	4.42	5.64
Composition U (atomes %)			
U234	0.002	0.002	0.002
U235	0.229	0.226	0.236
U236	0.004	0.004	0.002
U238	99.765	99.768	99.760
Composition Pu (atomes %)			
Pu238	0.85	0.83	0.87
Pu239	66.7	66.8	66.7
Pu240	20.7	20.5	20.6
Pu241	7.6	7.7	7.7
Pu242	2.9	2.8	2.9
Am241	1.3	1.4	1.3

Tableau 4.1 – Composition des pastilles MOX SLB1 à la date de fabrication

	Durée (jepp) ou jours pour le refroidissement	Taux de combustion moyen JJX (MWj/t)	Taux de combustion moyen HJX (MWj/t)
Cycle 1	302		
Stretch-out 1	34	11960	12090
Refroidissement 1	62		
Cycle 2	304		
Stretch-out 2	48	26130	25440
Refroidissement 2	36		
Cycle 3	311		
Stretch-out 3	33	37900	37500

Tableau 4.2 – Durée des cycles SLB1 et taux de combustion moyen au déchargement

Les échantillons analysés, obtenus par découpe des crayons extraits sont tous prélevés à la cote médiane 1900 mm. Le Tableau 4.3 présente l'ensemble des taux de combustion d'interprétation (obtenus par recalage sur le Néodyme) des différents échantillons de combustibles irradiés retenus dans Saint-Laurent B1. Dans le but de s'affranchir de l'influence de l'environnement pour la qualification des données nucléaires, les deux crayons (notés Q14 et Q17) appartenant à la première couronne périphérique sont exclus dans l'étude (Figure 4.5).

Echantillon	Taux de combustion (MWj/t)	Indicateur de BU	Isotopes Analysés
FFP00JJX-A04	9903	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd}$	$^{234}\text{U}$ $^{235}\text{U}$ $^{236}\text{U}$ $^{238}\text{U}$ $^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu}$ $^{240}\text{Pu}$ $^{241}\text{Pu}$ $^{242}\text{Pu}$ $^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am}$ $^{242\text{m}}\text{Am}$ $^{243}\text{Am}$ $^{243}\text{Cm}$ $^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm}$ $^{143}\text{Nd}$ $^{145}\text{Nd}$ $^{133}\text{Cs}$
FFP00JJX-P14	13238	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd}$	$^{234}\text{U}$ $^{235}\text{U}$ $^{236}\text{U}$ $^{238}\text{U}$ $^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu}$ $^{240}\text{Pu}$ $^{241}\text{Pu}$ $^{242}\text{Pu}$ $^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am}$ $^{242\text{m}}\text{Am}$ $^{243}\text{Am}$ $^{243}\text{Cm}$ $^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm}$ $^{143}\text{Nd}$ $^{145}\text{Nd}$ $^{133}\text{Cs}$ $^{153}\text{Eu}$ $^{155}\text{Gd}$ $^{147}\text{Sm}$ $^{149}\text{Sm}$ $^{150}\text{Sm}$ $^{151}\text{Sm}$ $^{152}\text{Sm}$ $^{95}\text{Mo}$ $^{101}\text{Ru}$ $^{103}\text{Rh}$ $^{109}\text{Ag}$ $^{99}\text{Tc}$
FFP00HJX-I13	29283	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd}$	$^{234}\text{U}$ $^{235}\text{U}$ $^{236}\text{U}$ $^{238}\text{U}$ $^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu}$ $^{240}\text{Pu}$ $^{241}\text{Pu}$ $^{242}\text{Pu}$ $^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am}$ $^{242\text{m}}\text{Am}$ $^{243}\text{Am}$ $^{243}\text{Cm}$ $^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm}$ $^{143}\text{Nd}$ $^{145}\text{Nd}$ $^{133}\text{Cs}$ $^{153}\text{Eu}$ $^{155}\text{Gd}$ $^{147}\text{Sm}$ $^{149}\text{Sm}$ $^{150}\text{Sm}$ $^{151}\text{Sm}$ $^{152}\text{Sm}$ $^{95}\text{Mo}$ $^{101}\text{Ru}$ $^{103}\text{Rh}$ $^{109}\text{Ag}$ $^{99}\text{Tc}$
FFP00HJX-I02	29455	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd}$	$^{234}\text{U}$ $^{235}\text{U}$ $^{236}\text{U}$ $^{238}\text{U}$ $^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu}$ $^{240}\text{Pu}$ $^{241}\text{Pu}$ $^{242}\text{Pu}$ $^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am}$ $^{242\text{m}}\text{Am}$ $^{243}\text{Am}$ $^{243}\text{Cm}$ $^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm}$ $^{143}\text{Nd}$ $^{145}\text{Nd}$ $^{133}\text{Cs}$ $^{153}\text{Eu}$ $^{155}\text{Gd}$ $^{147}\text{Sm}$ $^{149}\text{Sm}$ $^{150}\text{Sm}$ $^{151}\text{Sm}$ $^{152}\text{Sm}$ $^{95}\text{Mo}$ $^{101}\text{Ru}$ $^{103}\text{Rh}$ $^{109}\text{Ag}$ $^{99}\text{Tc}$
FFP00HJX-N13	42586	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd}$	$^{234}\text{U}$ $^{235}\text{U}$ $^{236}\text{U}$ $^{238}\text{U}$ $^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu}$ $^{240}\text{Pu}$ $^{241}\text{Pu}$ $^{242}\text{Pu}$ $^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am}$ $^{242\text{m}}\text{Am}$ $^{243}\text{Am}$ $^{243}\text{Cm}$ $^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm}$ $^{133}\text{Cs}$
FFP00HJX-P16	43170	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd}$	$^{234}\text{U}$ $^{235}\text{U}$ $^{236}\text{U}$ $^{238}\text{U}$ $^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu}$ $^{240}\text{Pu}$ $^{241}\text{Pu}$ $^{242}\text{Pu}$ $^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am}$ $^{242\text{m}}\text{Am}$ $^{243}\text{Am}$ $^{243}\text{Cm}$ $^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm}$ $^{143}\text{Nd}$ $^{145}\text{Nd}$ $^{133}\text{Cs}$ $^{153}\text{Eu}$ $^{155}\text{Gd}$ $^{147}\text{Sm}$ $^{149}\text{Sm}$ $^{150}\text{Sm}$ $^{151}\text{Sm}$ $^{152}\text{Sm}$ $^{95}\text{Mo}$ $^{101}\text{Ru}$ $^{103}\text{Rh}$ $^{109}\text{Ag}$ $^{99}\text{Tc}$
FFP00HJX-L14	46152	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd}$	$^{234}\text{U}$ $^{235}\text{U}$ $^{236}\text{U}$ $^{238}\text{U}$ $^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu}$ $^{240}\text{Pu}$ $^{241}\text{Pu}$ $^{242}\text{Pu}$ $^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am}$ $^{242\text{m}}\text{Am}$ $^{243}\text{Am}$ $^{243}\text{Cm}$ $^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm}$ $^{143}\text{Nd}$ $^{145}\text{Nd}$ $^{133}\text{Cs}$ $^{153}\text{Eu}$ $^{155}\text{Gd}$ $^{147}\text{Sm}$ $^{149}\text{Sm}$ $^{150}\text{Sm}$ $^{151}\text{Sm}$ $^{152}\text{Sm}$ $^{95}\text{Mo}$ $^{101}\text{Ru}$ $^{103}\text{Rh}$ $^{109}\text{Ag}$ $^{99}\text{Tc}$

**Tableau 4.3 – Taux de combustion de chaque échantillon de combustibles irradiés retenus SLB1 (TC d’interprétation) et indicateur de burn-up utilisé**

## Dampierre 2

Au début des années 2000, dans le cadre du projet Gestion Nouvelle Cœur et Combustible (GESTN), le



CEA a élaboré, en coopération avec EDF et AREVA-NP, un ensemble de programmes expérimentaux complets de mesures neutroniques dédiés spécifiquement aux études sur les combustibles à Haut Taux de Combustion (HTC) tant UOx que MOx. Ces programmes, qui se poursuivent encore actuellement, consistent en des résultats analytiques d'inventaire (Noyaux lourds et Produits de Fission) obtenus par mesure après dissolution de petits tronçons de crayons combustibles, et en des mesures par oscillation dans le réacteur MINERVE du CEA/SPEX sur des réseaux simulant soit un cœur REP-UOx, soit un cœur REP-MOX [BM-5]. Ces programmes expérimentaux ont pour objectif d'étendre la base de qualification des formulaires de calcul neutronique (APOLLO2, DARWIN, CRISTAL) afin de couvrir également le domaine des Taux de Combustion élevés et de mesurer la perte globale de réactivité d'un combustible utilisé par rapport à un combustible neuf. Les positions des crayons extraits pour analyse chimique et interprétés sont repérées sur la Figure 4.6, indiquant également le nombre de cycles subis [BM-6].

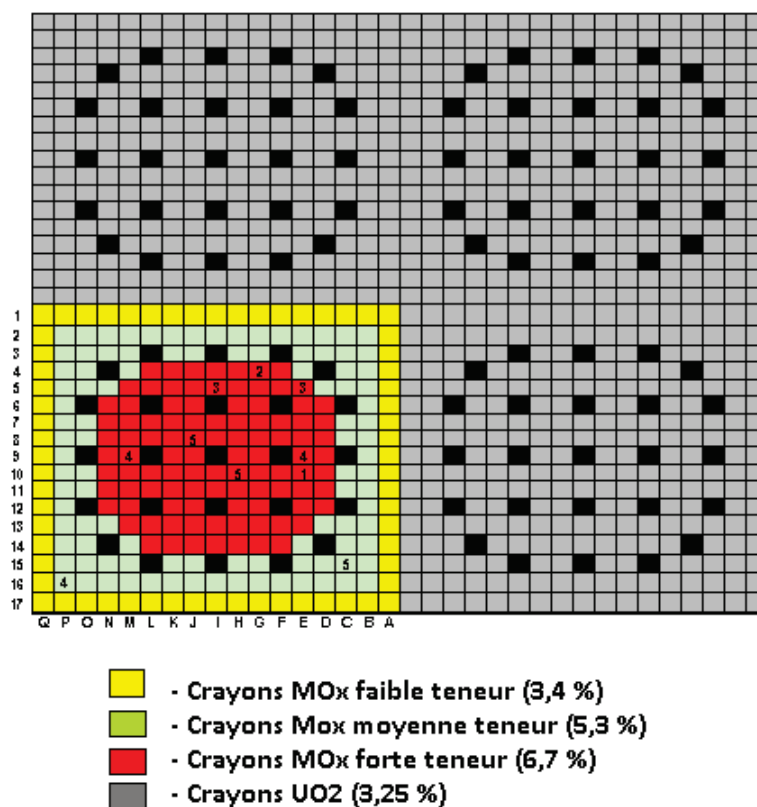


Figure 4.6 – Positionnement des crayons analysés après irradiation dans Dampierre 2

Les crayons analysés sont extraits des assemblages de type AFA<sup>3</sup> (Advanced Fuel Assembly) FXP0EG à la fin des cycles 1 et 3, et FXP0EH à la fin des cycles 2, 4 et 5. Sont donc disponibles des informations relatives à un crayon 1 cycle, 1 crayon 2 cycles, 2 crayons 3 cycles, 3 crayons 4 cycles et 3 crayons 5 cycles. La majorité des crayons extraits se trouvent en zone centrale à forte teneur Pu ; sauf les crayons P16 et C15 situés dans la zone à teneur Pu intermédiaire. Toutes les informations relatives à la description de l'irradiation et aux compositions initiales des échantillons analysés sont fournies dans la note en référence [BM-7]. La composition initiale des crayons MOx étudiés est résumée dans

3. La différence principale par rapport aux assemblages Standard est la composition des grilles de maintien en Zircaloy avec les ressorts de maintien des crayons en Inconel.

Lot de pastilles	IL 815/01/0	IL 860/01/0	IL 864/01/0
Crayon extrait correspondant	E10, G04, I05, E05, E09, M09, J08, H10	P16	C15
Densité (g/cm <sup>3</sup> )	10.364	10.394	10.393
Teneur U/oxyde en poids%	82.260	83.511	83.527
Teneur Pu/oxyde en poids%	5.816	4.584	4.563
Teneur Am/oxyde en poids%	0.081	0.069	0.069
Teneur en poids% (Pu+Am)/(U+Pu+Am)	6.689	5.278	5.253
Isotopie U en atomes%			
<sup>234</sup> U / U	0.003	0.003	0.003
<sup>235</sup> U / U	0.244	0.242	0.242
<sup>236</sup> U / U	0.001	0.001	0.001
<sup>238</sup> U / U	99.752	99.754	99.754
Isotopie Pu et Am en atomes%			
<sup>238</sup> Pu / (Pu + Am)	1.162	1.172	1.172
<sup>239</sup> Pu / (Pu + Am)	59.735	59.706	59.706
<sup>240</sup> Pu / (Pu + Am)	24.087	24.038	24.038
<sup>241</sup> Pu / (Pu + Am)	8.955	8.930	8.930
<sup>242</sup> Pu / (Pu + Am)	4.691	4.673	4.673
<sup>241</sup> Am / (Pu + Am)	1.370	1.481	1.481

Tableau 4.4 – Composition des pastilles MOX Dampierre à la date de fabrication

le Tableau 4.4 et l'historique de fonctionnement de la tranche Dampierre 2 fait l'objet du Tableau 4.5. Le Tableau 4.5 synthétise les informations relatives à la description détaillée des cinq cycles d'irradiation dans la tranche Dampierre 2 [BM-8]. Concernant les différentes phases de refroidissement, sont pris en compte : les 4 arrêts intercycles, certains arrêts intracycles et les refroidissements après irradiation jusqu'aux dates d'analyse des différents isotopes. Les cotes moyennes des échantillons E09, M09, P16, C15, J08, H10 découpés pour analyse chimique correspondent à la cote 1900 mm (par rapport au bas de la colonne fissile). L'échantillon du crayon E10 a été découpé à la cote 2126 mm et le crayon E05 à la cote 2100.

	Durée (jours)	Puissance (W/g)	Température combustible (°C)	Température gaine (°C)	Température modérateur (°C)	$C_B$ (ppm)
Cycle 1	123	42.38	622	351	306	550
Arrêt	86	•	•	•	•	•
Cycle 1	123	42.38	600	356	306	550
Arrêt Inter-Cycle	48	•	•	•	•	•
Cycle 2	110	40.19	642	355	306	600
Arrêt	71	•	•	•	•	•
Cycle 2	198	40.19	606	345	306	600
SO Cycle 2	62	36.26	529	330	294	0
Arrêt Inter-Cycle	55	•	•	•	•	•
Cycle 3	306	39.75	603	342	306	600
SO Cycle 3	21	40.19	554	333	294	0
Arrêt Inter-Cycle	125	•	•	•	•	•
Cycle 4	268	39.75	576	337	306	600
SO Cycle 4	24	39.32	543	332	294	0
SO Cycle 4	24	36.70	516	327	294	0
Arrêt Inter-Cycle	441	•	•	•	•	•
Cycle 5	54	27.53	559	336	306	600
Arrêt	8	•	•	•	•	•
Cycle 5	82	32.76	559	336	306	600
Arrêt	16	•	•	•	•	•
Cycle 5	110	33.11	520	336	306	600
SO Cycle 5	25	33.80	535	333	294	0
SO Cycle 5	26	30.32	520	330	294	0

**Tableau 4.5 – Historique de fonctionnement de la tranche Dampierre 2**

Le Tableau 4.6 récapitule l'ensemble des taux de combustion d'interprétation (obtenus par recalage sur le Néodyme) pour les différents échantillons de combustibles irradiés dans Dampierre 2 « centraux » sélectionnés pour la définition des facteurs correctifs isotopiques.

Echantillon	Taux de combustion (MWj/t)	Indicateur de BU	Isotopes Analysés
FXP0EG-E05	42606	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd} + ^{148}\text{Nd} + ^{150}\text{Nd}$	$^{234}\text{U} \ ^{235}\text{U} \ ^{236}\text{U} \ ^{238}\text{U} \ ^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} \ ^{240}\text{Pu} \ ^{241}\text{Pu} \ ^{242}\text{Pu} \ ^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am} \ ^{242\text{m}}\text{Am} \ ^{243}\text{Am} \ ^{243}\text{Cm} \ ^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm} \ ^{133}\text{Cs} \ ^{145}\text{Nd} \ ^{143}\text{Nd} \ ^{147}\text{Sm}$ $^{149}\text{Sm} \ ^{150}\text{Sm} \ ^{151}\text{Sm} \ ^{152}\text{Sm} \ ^{153}\text{Eu}$ $^{155}\text{Gd} \ ^{95}\text{Mo} \ ^{99}\text{Tc} \ ^{101}\text{Ru} \ ^{103}\text{Rh}$ $^{109}\text{Ag}$
FXP0EG-E10	10133	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd} + ^{148}\text{Nd} + ^{150}\text{Nd}$	$^{234}\text{U} \ ^{235}\text{U} \ ^{236}\text{U} \ ^{238}\text{U} \ ^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} \ ^{240}\text{Pu} \ ^{241}\text{Pu} \ ^{242}\text{Pu} \ ^{145}\text{Nd}$ $^{143}\text{Nd}$
FXP0EH-E09	52620	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd} + ^{148}\text{Nd} + ^{150}\text{Nd}$	$^{234}\text{U} \ ^{235}\text{U} \ ^{236}\text{U} \ ^{238}\text{U} \ ^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} \ ^{240}\text{Pu} \ ^{241}\text{Pu} \ ^{242}\text{Pu} \ ^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am} \ ^{242\text{m}}\text{Am} \ ^{243}\text{Am} \ ^{243}\text{Cm} \ ^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm} \ ^{133}\text{Cs} \ ^{145}\text{Nd} \ ^{143}\text{Nd}$
FXP0EH-M09	52805	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd} + ^{148}\text{Nd} + ^{150}\text{Nd}$	$^{234}\text{U} \ ^{235}\text{U} \ ^{236}\text{U} \ ^{238}\text{U} \ ^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} \ ^{240}\text{Pu} \ ^{241}\text{Pu} \ ^{242}\text{Pu} \ ^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am} \ ^{242\text{m}}\text{Am} \ ^{243}\text{Am} \ ^{243}\text{Cm} \ ^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm} \ ^{145}\text{Nd} \ ^{143}\text{Nd}$
FXP0EH-P16	51796	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd} + ^{148}\text{Nd} + ^{150}\text{Nd}$	$^{234}\text{U} \ ^{235}\text{U} \ ^{236}\text{U} \ ^{238}\text{U} \ ^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} \ ^{240}\text{Pu} \ ^{241}\text{Pu} \ ^{242}\text{Pu} \ ^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am} \ ^{242\text{m}}\text{Am} \ ^{243}\text{Am} \ ^{243}\text{Cm} \ ^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm} \ ^{133}\text{Cs} \ ^{145}\text{Nd} \ ^{143}\text{Nd}$
FXP0EH-J08	57478	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd} + ^{148}\text{Nd} + ^{150}\text{Nd}$	$^{234}\text{U} \ ^{235}\text{U} \ ^{236}\text{U} \ ^{238}\text{U} \ ^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} \ ^{240}\text{Pu} \ ^{241}\text{Pu} \ ^{242}\text{Pu} \ ^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am} \ ^{242\text{m}}\text{Am} \ ^{243}\text{Am} \ ^{243}\text{Cm} \ ^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm} \ ^{133}\text{Cs} \ ^{145}\text{Nd} \ ^{143}\text{Nd} \ ^{147}\text{Sm}$ $^{149}\text{Sm} \ ^{150}\text{Sm} \ ^{151}\text{Sm} \ ^{152}\text{Sm} \ ^{153}\text{Eu}$ $^{155}\text{Gd} \ ^{95}\text{Mo} \ ^{99}\text{Tc} \ ^{101}\text{Ru} \ ^{103}\text{Rh}$ $^{109}\text{Ag}$
FXP0EH-H10	57525	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd} + ^{148}\text{Nd} + ^{150}\text{Nd}$	$^{234}\text{U} \ ^{235}\text{U} \ ^{236}\text{U} \ ^{238}\text{U} \ ^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} \ ^{240}\text{Pu} \ ^{241}\text{Pu} \ ^{242}\text{Pu} \ ^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am} \ ^{242\text{m}}\text{Am} \ ^{243}\text{Am} \ ^{243}\text{Cm} \ ^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm} \ ^{133}\text{Cs} \ ^{145}\text{Nd} \ ^{143}\text{Nd}$
FXP0EH-C15	59431	$^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd} + ^{148}\text{Nd} + ^{150}\text{Nd}$	$^{234}\text{U} \ ^{235}\text{U} \ ^{236}\text{U} \ ^{238}\text{U} \ ^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu} \ ^{240}\text{Pu} \ ^{241}\text{Pu} \ ^{242}\text{Pu} \ ^{237}\text{Np}$ $^{241}\text{Am} \ ^{242\text{m}}\text{Am} \ ^{243}\text{Am} \ ^{243}\text{Cm} \ ^{244}\text{Cm}$ $^{245}\text{Cm} \ ^{133}\text{Cs} \ ^{145}\text{Nd} \ ^{143}\text{Nd} \ ^{150}\text{Sm}$ $^{151}\text{Sm} \ ^{152}\text{Sm} \ ^{153}\text{Eu} \ ^{155}\text{Gd}$

**Tableau 4.6 – Taux de combustion de chaque échantillon de combustibles irradiés Dampierre 2 retenus (TC d’interprétation) et indicateur de burn-up utilisé**

La base de données « PIE data » utilisée est présentée dans le Tableau 4.7.

	Gamme de BU (GWj/t)	Mesures	Nombre d’échantillons centraux
<b>SLB1</b>	30	U, Pu, Nd, Np, Am, Cm, Cs, Sm, Eu, Gd	7
<b>Dampierre 2</b>	10-58	U, Pu, Nd, Np, Am, Cm, Cs, Sm, Eu, Gd PF métalliques	8

**Tableau 4.7 – Répartition des échantillons disponibles pour chaque isotope du CBU REP-MOx**

Quinze échantillons irradiés ont été retenus s’étendant sur la plage de taux de combustion [10 GWj/t ;

60 GWj/t].

#### 4.2.2 Schéma de calcul utilisé dans le cadre de la qualification du bilan matière pour les REP

Dans le cas des calculs de cycle pour les REP, la démarche adoptée pour les calculs de cycle REP est l'utilisation d'un historique APOLLO2 simplifié et d'un historique fin décrit dans DARWIN/PEPIN [BM-1]. Le schéma de calcul utilisé pour la qualification du formulaire DARWIN2.3 se décompose en deux étapes :

- la création d'un fichier « SAPHYB » contenant des sections efficaces autoprotégées ainsi que les flux à différents taux de combustion calculés par APOLLO2 (sections condensées à un groupe et flux multigroupes).
- le calcul d'évolution, réalisé par le formulaire DARWIN/PEPIN2.3 [BM-9].

Le schéma de calcul utilisé 'CYCLE2008' bénéficie du retour d'expérience du schéma de référence 'CEA97' recommandé pour les calculs APOLLO2 en évolution des assemblages REP-UOx et MOx et sur une autoprotection en maillage SHEM à 281 groupes. Les options d'autoprotection sont celles recommandées pour le maillage SHEM à 281 groupes [BM-10] [BM-11] : un calcul d'autoprotection (step 0) ou de réautoprotection en évolution, au-dessus de 22,5eV (limite du maillage fin de SHEM), sur 2 types de crayons (distinction des positions « face » par rapport aux trous d'eau de l'assemblage et autres). Les noyaux lourds autoprotégés sont  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ . L'utilisation de l'autoprotection des mélanges entre 33 eV et 200 eV (groupes SHEM 80 à 90) pour le traitement des 4 noyaux  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$  (effet de protection mutuelle autour de la résonance à 6,7 eV de l' $^{238}\text{U}$ ) implique que les régions d'autoprotection soient identiques pour ces 4 noyaux et correspondent à celles définies pour l' $^{238}\text{U}$  qui est le noyau le plus sensible aux effets d'autoprotection spatiale. Dans ce domaine énergétique, le calcul spatial est réalisé avec la méthode des courants d'interface la plus précise d'APOLLO2 : option UP1 (sur les faces de chaque cellule, le flux angulaire est supposé constant en espace et linéaire en angle) et HETE (les probabilités de collision sont intégrées numériquement sur la géométrie exacte de chaque cellule). En dehors de la zone énergétique d'autoprotection des mélanges, le modèle de ralentissement utilisé est le modèle ST (statistique) et pour les groupes d'énergie où l'effet d'autoprotection est moins marqué, on se contente d'une méthode UP0 (flux d'interface constant en espace et en angle) avec une approximation ROTHX4 (probabilités de collision calculées sur des cellules cylindrisées). Pour les noyaux dont seules les résonances au dessous de 22,5 eV méritent d'être autoprotégées, un simple élargissement Doppler (mot-clé &DOPP) suffit. Du fait que l'autoprotection avec AUTOP n'intervient qu'au dessus de 22,5 eV, l'ordre d'autoprotection des isotopes est beaucoup moins important avec SHEM qu'avec XMAS (172 groupes). On conserve cependant le principe d'autoprotéger en premier l' $^{238}\text{U}$  du fait de son poids neutronique le plus élevé. Pour les autres actinides  $^{234}\text{U}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ , et  $^{244}\text{Cm}$ , on effectue uniquement un élargissement Doppler au dessous de 22,5 eV. L'élargissement Doppler est également à effectuer sur les 11 produits de fission suivants :  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{131}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{150}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ . Le zirconium est autoprotégé au dessus de 132,7 eV. Le recalcul de l'autoprotection est effectué en évolution (4, 8, 12, puis tous les 12 GWj/t). Le Tableau 4.8 synthétise les options retenues :

#### Modélisation géométrique

L'assemblage MOx a été environné par des crayons UOx durant toute la durée d'irradiation en réacteur. La proportion MOx/UOx est respectée dans la modélisation APOLLO2 afin d'imposer un spectre neutronique représentatif(Figure 4.7).

Bibliothèque	CEA2005V4.1.1 à 281 groupes
Regroupement des cellules	18 cellules 'physique' combustible 2 cellules 'physique' tube guide 1 cellule 'physique' tube d'instrumentation (la lame d'eau est intégrée dans les cellules périphériques)
Géométrie pour calcul d'autoprotection	2 crayons d'autoprotection ; autop. en couronne Régions d'autoprotection identiques dans le combustible (pour autop mélange)
Géométrie cellule	Pastille combustible : 4 couronnes (50%, 30%, 15% et 5% du volume total pastille) 1 point de calcul dans le modérateur
Calcul de flux	UP1 HETE
Recalcul d'autoprotection	0, 4000, 8000, 12000, 24000, 36000, 48000 MWj/t
Pas d'évolution	0, 37.5, 75, 112.5, 150, 325, 500, 750, 1000, 1500, 2000, 2500, 3000, 3500, 4000, 5000, 6000, 7000, 8000, 10000, 12000 puis tous les 2000 MWj/t

Tableau 4.8 – Options de calcul APOLLO2 pour l'interprétation d'échantillons de combustible irradié REP-MOX

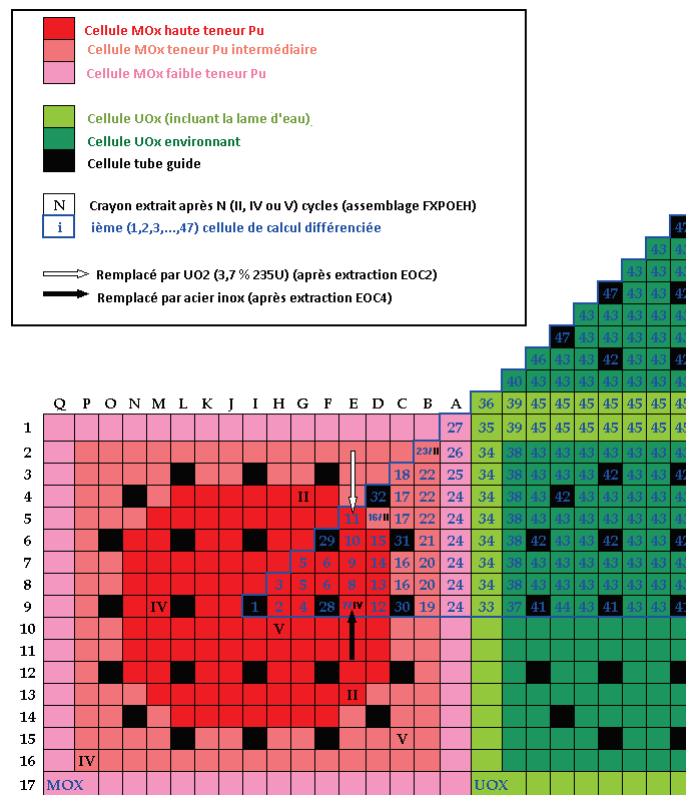


Figure 4.7 – Géométrie multi-cellule du calcul assemblage MOX en évolution CYCLE2008

#### Paramètres de fonctionnement–suivi de cycle

Une phase d'irradiation est définie par les paramètres suivants :

- température combustible ;



- température modérateur ;
- température gaine ;
- concentration en bore ;
- puissance volumique dégagée par le crayon ;
- durée de la phase d'irradiation.

#### 4.2.3 Détermination du taux de combustion

Les informations fournies par EDF concernant le suivi de cycle permettent d'estimer un burn-up (puissance volumique et temps). La connaissance expérimentale du taux de combustion des échantillons de combustible irradiés est cruciale, car c'est elle qui détermine la précision avec laquelle l'écart expérience-calcul est obtenu pour chaque isotope analysé. Pour les isotopes situés en bout de chaîne, tel que le  $^{242}\text{Pu}$  (voire le  $^{238}\text{Pu}$ ) pour lequel l'abondance se construit en  $\Phi^4$ , l'incertitude liée à la détermination de la fluence  $\Phi$  peut devenir prépondérante. Le taux de combustion de l'échantillon n'est pas directement mesurable. Il est donc généralement déduit des concentrations de certains isotopes qui sont des indicateurs de taux de combustion. Un isotope constituant un bon indicateur du taux de combustion doit être produit uniquement par fission, et ne disparaître que très peu par capture. C'est le cas du rapport  $\frac{^{148}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}$  qui est un très bon indicateur de fluence, à condition que les sections efficaces de capture du  $^{148}\text{Nd}$  soient bien connues. De plus, le nombre de noyaux d' $^{238}\text{U}$  variant très peu au cours de l'évolution, l'incertitude liée à sa détermination par le calcul est faible. On notera que lors des interprétations précédentes réalisées avec JEF-2.2 [BM-12] d'autres indicateurs du taux de combustion ont été utilisés  $\frac{^{145}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}$ ,  $\frac{^{150}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}$ ,  $\frac{^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd}}{^{238}\text{U}}$ . En effet, le rendement de fission cumulé provenant du  $^{239}\text{Pu}$  et conduisant au  $^{148}\text{Nd}$  introduit dans JEF2.2 était  $\gamma_{^{148}\text{Nd}} = 1,68\%$  soit 2% supérieur au rendement de Meek et Rider ( $\gamma_{^{148}\text{Nd}} = 1,64\%$ ). Ceci entraînait une augmentation de 2% sur la formation du  $^{148}\text{Nd}$  à haut taux de combustion. De fait d'autres produits de fission stables étaient utilisés comme indicateurs du burn-up bien qu'ils disparaissent en partie par capture radiative. Dans l'évaluation JEFF-3.1.1, la valeur du rendement provenant des fissions du  $^{239}\text{Pu}$  qui conduisent au  $^{148}\text{Nd}$  a été diminuée. Cependant cette correction ne semble pas suffisante et conduit à une sous estimation des taux de combustion d'interprétation. Dans le but de réduire les incertitudes statistiques, les quatre isotopes du néodyme 145, 146, 148 et 150 seront retenus comme indicateurs de burn-up et la formule ci-dessous permet d'effectuer le meilleur recalage en burn-up possible en trouvant le meilleur compromis par rapport aux quatre isotopes précédemment cités :

$$Correction_{BU} = \frac{2 \cdot \frac{C_{^{145}\text{Nd}+^{146}\text{Nd}}}{E_{^{145}\text{Nd}+^{146}\text{Nd}}} + \frac{C_{^{148}\text{Nd}}}{E_{^{148}\text{Nd}}} + \frac{C_{^{150}\text{Nd}}}{E_{^{150}\text{Nd}}}}{4}$$

avec C valeur calculée et E valeur mesurée. Notons que l'analyse chimique des isotopes du néodyme est fiable car ils sont non volatils et ne précipitent pas.

#### 4.2.4 Détermination des incertitudes

Les incertitudes relatives aux écarts calcul/expérience ont pour origines [BM-8] :

- l'incertitude associée à la température effective du combustible, telle que déterminée par le code de thermomécanique METEOR [BM-13], généralement considérée comme égale à  $\pm 50^\circ\text{C}(1\sigma)$  ;
- l'incertitude relative aux conditions thermohydrauliques régnant à la cote axiale du tronçon considérée, c'est-à-dire la température du modérateur ( $\pm 2^\circ\text{C}$ ) ;
- l'incertitude associée au recalage en taux de combustion ( $\pm 1,5\%$  sur les rendements de fission des isotopes du Néodyme) ;

- l'incertitude liée aux analyses chimiques ;
- l'incertitude liée à la teneur initiale en Plutonium ( $\pm 0.01\%$ ) ;
- l'incertitude liée à la description des paramètres de fonctionnement (incertitude de l'approximation du suivi de cycle) ;
- l'incertitude liée au taux de combustion de l'environnement UOx entourant l'assemblage expérimental. Pour estimer cette dernière un premier calcul avec des assemblages environnant ayant subi un cycle et demi soit un burnup de 18 GWj/t est effectué dans un premier temps puis un second est réalisé en considérant des assemblages environnants ayant subi 3 cycles c'est-à-dire 36 GWj/t. L'incertitude relative à chacun de ces deux calculs est calculée et l'incertitude liée à l'environnement retenue est l'amplitude maximale donnée par la réunion des intervalles d'incertitude de ces deux calculs.

Indépendantes, ces différentes incertitudes se combinent quadratiquement. Parmi les différentes sources d'incertitudes considérées, on constate l'importance prédominante de l'incertitude liée au taux de combustion comme le montre la Figure 4.8, obtenue par propagation des sources d'incertitudes ci-dessus dans le calcul de la concentration atomique du  $^{239}\text{Pu}$  au cours de l'évolution en fonction du taux de combustion.

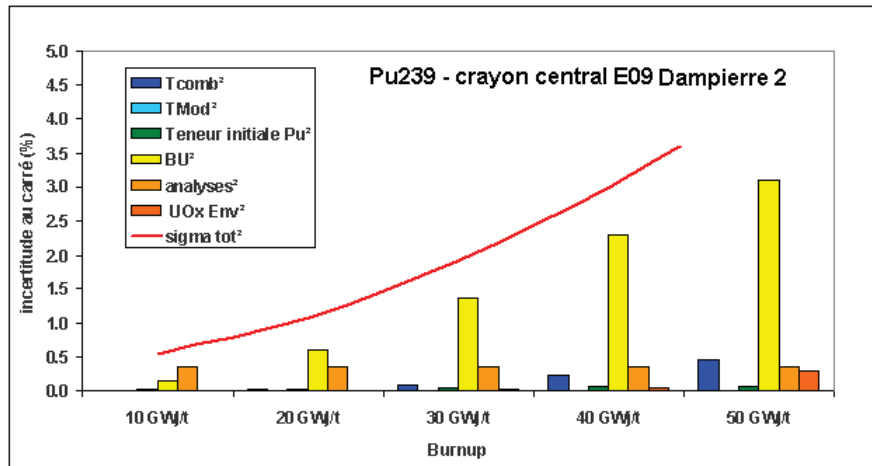


Figure 4.8 – Importance comparée des différentes sources d'incertitudes ( $1,65 \sigma$  – exemple du rapport des concentrations atomiques  $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ )

Le Tableau 4.9 présente les différentes incertitudes prises en compte.

$^{239}\text{Pu}$	10 GWj/t	30 GWj/t	40 GWj/t	50 GWj/t	60 GWj/t
Taux de combustion	0,7 %	1,2 %	1,7 %	-1,4 %	-0,4 %
Teneur Pu	-0,2 %	-0,3 %	-0,3 %	-0,2 %	-0,3 %
Température Modérateur	0 %	0 %	-0,1 %	0,1 %	0,1 %
Température combustible	-0,1%	0,3%	0,7 %	0,7 %	-0,8 %
Analyse	0,5 %	0,5 %	0,5 %	0,5 %	0,5 %
Environnement	0 %	0,1 %	0,1 %	0,1 %	0 %
Incertitude Totale ( $1,65 \sigma$ )	1,5 %	2,3 %	3,2 %	2,7 %	1,8 %

Tableau 4.9 – Evaluation des différentes sources d'incertitudes - exemple du rapport des concentrations atomiques  $^{239}\text{Pu}/^{238}\text{U}$

Concernant les analyses chimiques, une valeur enveloppe a été considérée.

#### 4.2.5 Biais associé à la qualification des actinides

##### $^{234}\text{U}$

On remarque que le bilan matière du  $^{234}\text{U}$  est très bien calculé par DARWIN2.3 sur toute la plage de burnup disponible (Figure 4.9). Le bilan matière de l' $^{234}\text{U}$  dépend très fortement de sa concentration initiale dans le combustible. L'incertitude totale associée est égale à 3%. Le Tableau 4.10 présente les tendances observées :

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-0,9	-1,3
$\sigma$ (%)	3,0	3,0
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	2,2	1,9

Tableau 4.10 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

Pour cet isotope, un biais pénalisé de 2,2%, correspondant à un facteur correctif de 0,98, est retenu.

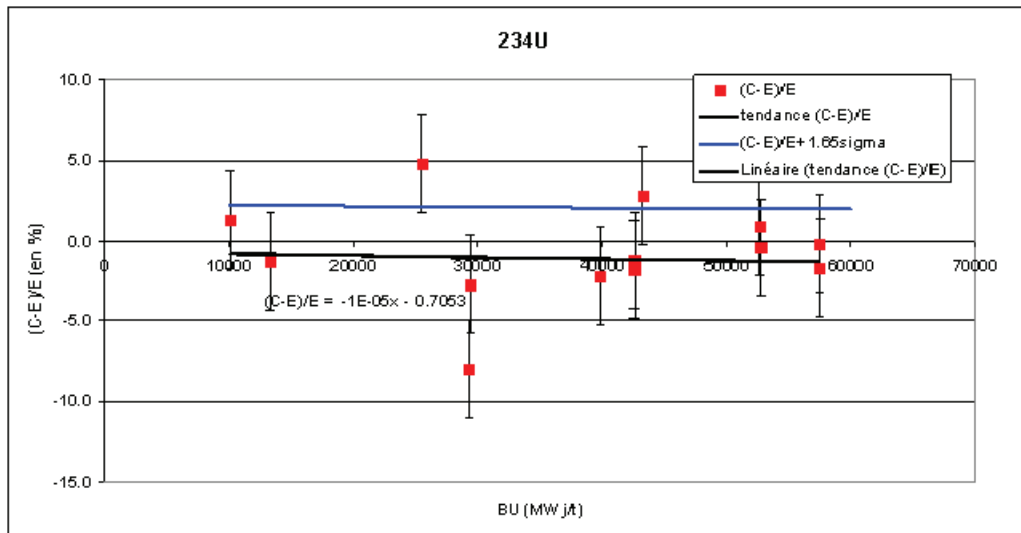


Figure 4.9 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

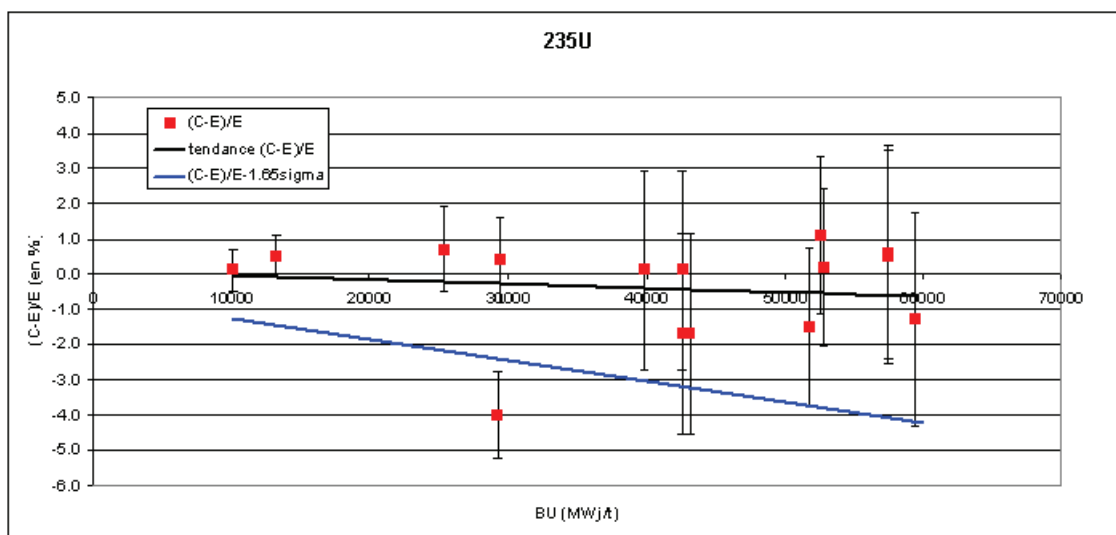
##### $^{235}\text{U}$

L' $^{235}\text{U}$  est calculé par DARWIN2.3 à  $\pm 1\%$  à 30 GWj/t et à  $\pm 0,5\%$  à 50 GWj/t. La tendance observée des écarts (C/E-1) en fonction du burnup est une droite de très faible pente (Tableau 4.11 et Figure 4.10). En effet cet écart est de -0,1% à 15 GWj/t et de -0,5% à 60 GWj/t. La tendance du biais pénalisé (Figure 4.10 courbe bleue) est pilotée majoritairement par l'incertitude sur le burnup qui devient plus importante avec l'augmentation de celui-ci.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-0,1	-0,5
$\sigma$ (%)	0,6	3,0
[C/E-1]-1,65 $\sigma$ (%)	-1,6	-4,3

**Tableau 4.11 – Tendance des écarts C/E-1 (%) pour le rapport de concentrations atomiques  $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$  en fonction du TC et biais pénalisé**

Pour un assemblage ayant été irradié pendant un cycle le biais pénalisé retenu vaut -1,6% avec JEFF-3.1.1. Le facteur correctif pénalisé appliqué à l' $^{235}\text{U}$  est égal à 1,016 à 15 GWj/t et de 1,045 à 60 GWj/t (Tableau 4.11).



**Figure 4.10 – Ecart C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée**

### $^{236}\text{U}$

On constate que les écarts (C/E-1) varient faiblement en fonction du burnup dans la plage [-3,5% ; -1,7%] (Figure 4.11).

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-3,5	-1,7
$\sigma$ (%)	1,8	1,5
[C/E-1]+1,65 $\sigma$ (%)	-1,0	0,4

**Tableau 4.12 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{236}\text{U} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé**

On note que l'incertitude associée dépend majoritairement du burnup et des analyses chimiques et est relativement faible. Pour cet isotope absorbant, un biais pénalisé de 0,4%, correspondant à un facteur correctif de 0,99 est retenu.

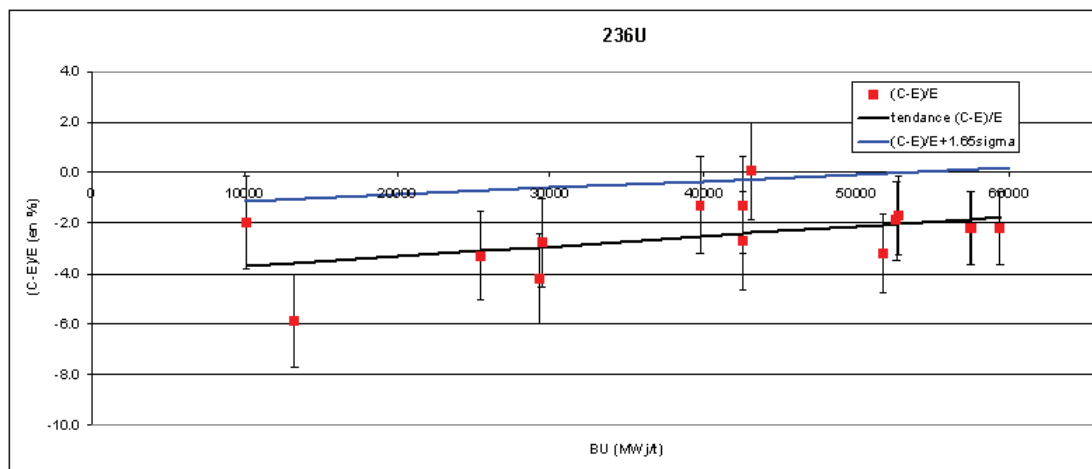


Figure 4.11 – Ecart  $C/E - 1$  pour le rapport de concentrations atomiques  $^{236}\text{U} / ^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

### $^{238}\text{Pu}$

On constate une tendance à la sous-estimation du calcul du bilan-matière du  $^{238}\text{Pu}$  avec DARWIN2.3 (Tableau 4.13 et Figure 4.12).

TCT (MWj/t)	15000	60000
$C/E-1$ (%)	-3,6	-1,8
$\sigma$ (%)	0,9	0,7
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	-2,0	-0,2

Tableau 4.13 – Tendance des écarts  $C/E-1$  (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{238}\text{Pu} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

Suite à la pénalisation de la droite de tendance des écarts  $C/E-1$  par les incertitudes, un biais pénalisé de -0,2% est retenu. Ce biais étant conservatif vis-à-vis de la maximisation du  $k_{\text{eff}}$ , sa valeur retenue est égale à 1. La concentration du  $^{238}\text{Pu}$  calculée ne sera pas modifiée.

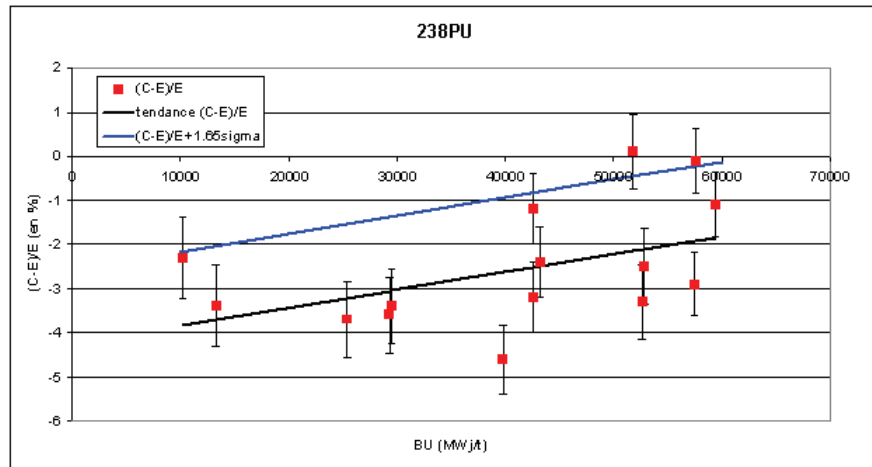


Figure 4.12 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{238}\text{Pu} / ^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

### $^{239}\text{Pu}$

La droite de tendance des écarts (C/E-1) du  $^{239}\text{Pu}$  varie faiblement en fonction du TC, dans la plage de valeurs [-0,3% / 1,5%] comme le montre la Figure 4.13. Pour un burn-up > à 30 GWj/t, on note une légère tendance à la surestimation. L'incertitude associée varie faiblement autour de 1% (Tableau 4.14).

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-0,3	1,5
$\sigma$ (%)	0,9	1,1
[C/E-1]-1,65 $\sigma$ (%)	-1,3	-4,9

Tableau 4.14 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{239}\text{Pu} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

Pour cet isotope, la valeur exacte du biais en fonction du burn-up retenue est : Biais  $^{239}\text{Pu}$  (en %) =  $-0,1156-8 \times 10^{-5} \times \text{BU (MWj/t)}$ .

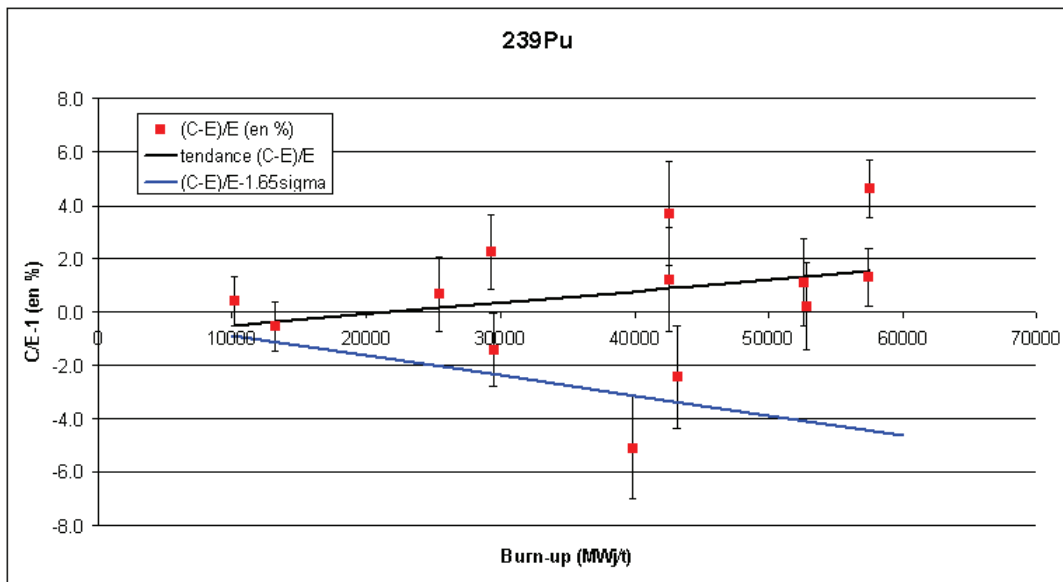


Figure 4.13 – Ecart  $C/E - 1$  pour le rapport de concentrations atomiques  $^{239}\text{Pu} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

On peut remarquer que l'écart calcul-expérience obtenu pour le taux de combustion de 40 GWj/t sur l'échantillon E05(2) ne présente pas la même tendance que les autres. En effet, l'échantillon considéré a été prélevé sur un tronçon de réserve, mais bien que l'on ait veillé à être le plus éloigné possible de la grille de maintien, les résultats d'analyse montrent que la présence de celle-ci a eu une certaine influence, provoquant une dépression du flux thermique reçu par l'échantillon, liée à une masse d'eau plus faible de l'environnement de cet échantillon. Cet effet a engendré une augmentation locale du facteur de conversion et donc une augmentation locale du bilan matière de  $^{239}\text{Pu}$ , expliquant la sous-estimation par le calcul. Cette tendance est aussi observée sur les autres noyaux

#### $^{240}\text{Pu}$

La formation du  $^{240}\text{Pu}$  est surestimée de 2,5% en moyenne (Tableau 4.15 et Figure 4.14). Les incertitudes associées sont faibles. Un biais pénalisé de 4,8%, correspondant à un facteur correctif de 0,95 peut être retenu pour cet isotope.

TCT (MWj/t)	15000	60000
$C/E - 1$ (%)	1,5	3,7
$\sigma$ (%)	0,4	1,2
$[C/E - 1] + 1,65\sigma$ (%)	2,1	4,8

Tableau 4.15 – Tendance des écarts  $C/E - 1$  (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{240}\text{Pu} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé



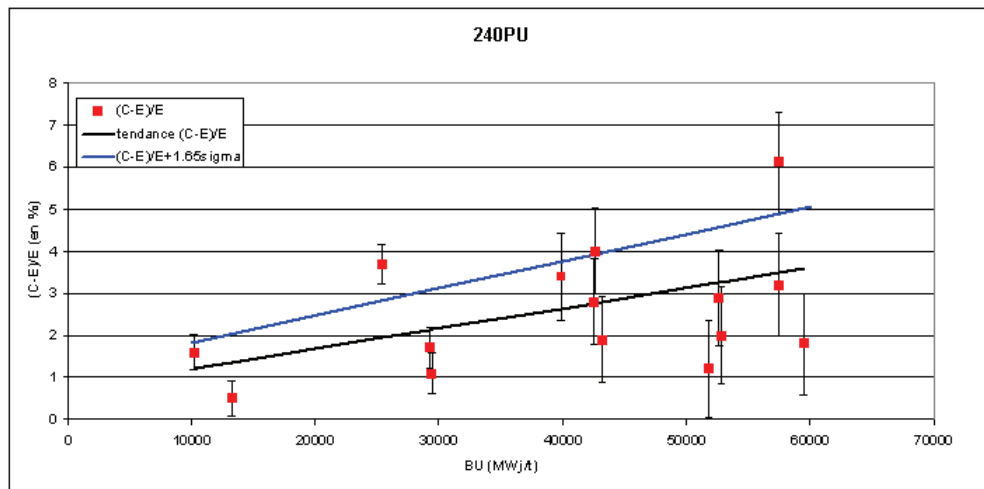


Figure 4.14 – Ecart C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{240}\text{Pu}$  /  $^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

#### $^{241}\text{Pu}$

Les écarts C/E présentent une sous-estimation générale de l'ordre de 2%, la droite de tendance associée variant dans la plage [-3,2% ; -1,0%] pour un burn-up compris entre 15 et 60 GWj/t (Figure 4.15). L'incertitude associée varie peu comme le montre le Tableau 4.16. On peut remarquer une sensibilité non négligeable de cet isotope aux variations de la température combustible en cours d'irradiation. On remarque que le biais pénalisé de la droite des tendances des incertitudes varie de 2% environ dans la plage de taux de combustion considérée. La valeur exacte du biais en fonction du taux de combustion retenue est : biais  $^{241}\text{Pu} = 4 \times 10^{-5} \times \text{BU} - 4,7257$  (MWj/t).

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-3,2	-1,0
$\sigma$ (%)	0,5	1,1
[C/E-1]-1,65 $\sigma$ (%)	-4,1	-2,3

Tableau 4.16 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{241}\text{Pu}$  /  $^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

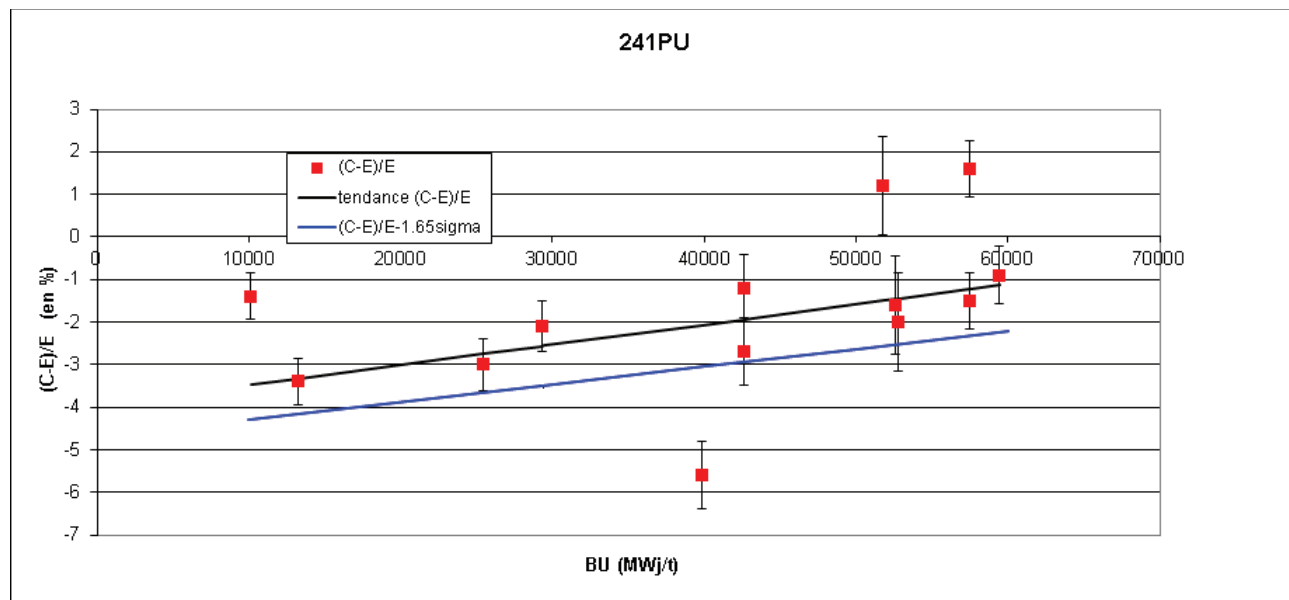


Figure 4.15 – Ecart  $C/E - 1$  pour le rapport de concentrations atomiques  $^{241}\text{Pu} / ^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

#### $^{242}\text{Pu}$

La tendance associée aux écarts  $C/E-1$  est une légère surestimation comprise entre [2,2% ; 0,8%] sur la plage de burn-up étudiée (Tableau 4.17 et Figure 4.16). Les incertitudes associées à ces écarts, de moyenne 1,8%, sont principalement dues à l'incertitude sur le recalage du taux de combustion. Le biais retenu est de 3 %.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	0,6	1,5
$\sigma$ (%)	0,9	0,9
[C/E-1]+1,65 $\sigma$ (%)	1,4	3,2

Tableau 4.17 – Tendance des écarts  $C/E-1$  (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{242}\text{Pu} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

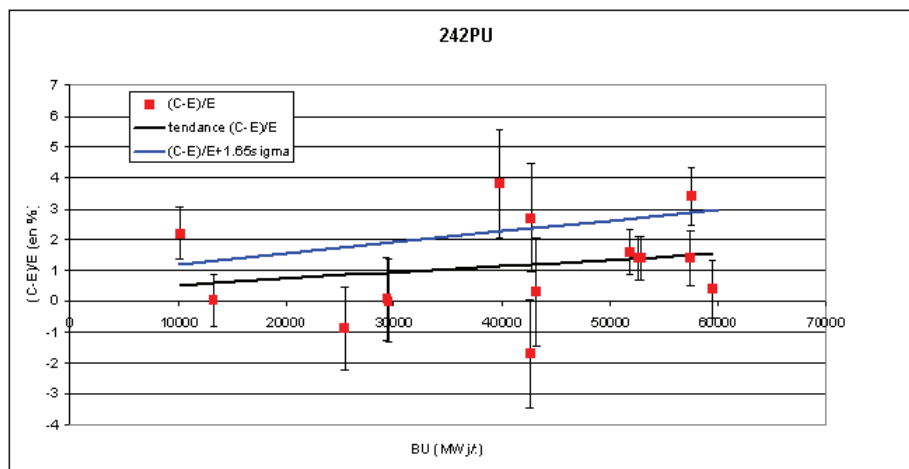


Figure 4.16 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{242}\text{Pu}$  /  $^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

### $^{237}\text{Np}$

Le bilan matière du  $^{237}\text{Np}$  est bien calculé par DARWIN2.3 comme le montrent le Tableau 4.18 et la Figure 4.17. On y remarque également que les incertitudes associées sont élevées (en moyenne 5%) dues essentiellement aux incertitudes du recalage du taux de combustion et aux incertitudes des analyses chimiques.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-1,7	-1,6
$\sigma$ (%)	4,5	5,0
[C/E-1]+1,65 $\sigma$ (%)	6,0	7,8

Tableau 4.18 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{237}\text{Np}$  /  $^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

Un biais pénalisé de 7,8% est retenu pour cet isotope.

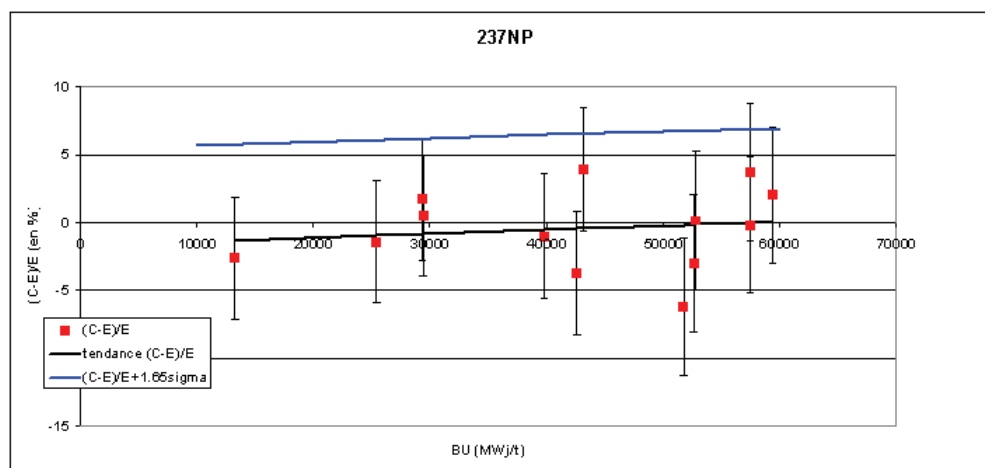


Figure 4.17 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{237}\text{Np}$  /  $^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

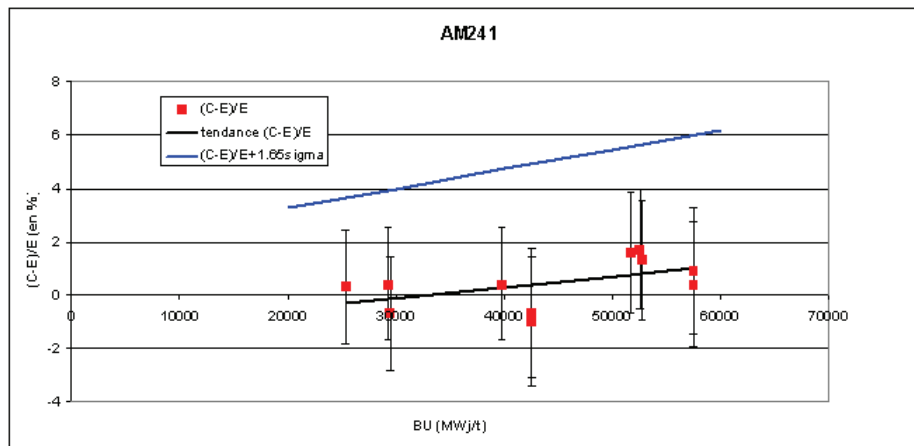
**$^{241}\text{Am}$** 

On constate sur le Tableau 4.19 que le bilan-matière de l' $^{241}\text{Am}$  est bien calculé par DARWIN2.3. Les écarts C/E -1 présentent une légère tendance à la surestimation pour des taux de combustion inférieurs à 35GWj/t comme le montre la Figure 4.18.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	2,0	3,8
$\sigma$ (%)	2,1	2,4
[C/E-1]+1,65 $\sigma$ (%)	2,8	6,0

**Tableau 4.19 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{241}\text{Am}$  /  $^{238}\text{U}$  et biais pénalisé**

Un biais de calcul de 6,0% est retenu, correspondant à un facteur correctif isotopique égal à 0,95.



**Figure 4.18 – Ecarts C/E-1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{241}\text{Am}$  /  $^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée**

 **$^{242m}\text{Am}$** 

Nettement sous-estimé avec DARWIN2.1, le calcul du bilan-matière du  $^{242m}\text{Am}$  est amélioré avec DARWIN2.3 pour de multiples raisons :

- Augmentation de la section de capture de l' $^{241}\text{Am}$  de l'ordre de 5% ;
- Diminution de la section de fission de l' $^{242m}\text{Am}$  de l'ordre de 7% ;
- Diminution de la section de capture de l' $^{242m}\text{Am}$  de 32% ;
- Modification des rapports de branchements entre l' $^{242m}\text{Am}$  et l' $^{242f}\text{Am}$ . Il est à présent correctement calculé, les écarts C/E-1 variant faiblement sur la plage [-0,6% ; -1,5%] pour des taux de combustion compris entre 15 et 60 GWj/t, comme le montrent le Tableau 4.20 et la Figure 4.19.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-0,6	-1,5
$\sigma$ (%)	3,3	3,5
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	-6,2	-8,4

Tableau 4.20 – Tendence des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{242m}\text{Am} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

Le biais pénalisé retenu pour cet isotope est de -8,4 %. Ce biais est piloté par les incertitudes.

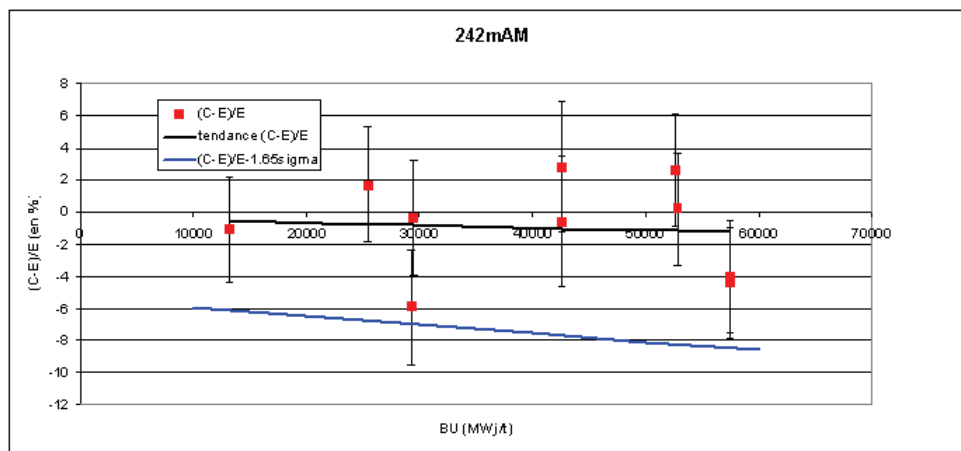


Figure 4.19 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{242m}\text{Am} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

### $^{243}\text{Am}$

Les écarts C/E -1 présentent une légère tendance à la sous-estimation pour des taux de combustion inférieurs à 35GWj/t et à la surestimation pour des TC supérieurs comme le montrent le Tableau 4.21 et la Figure 4.20. Un biais pénalisé de 8,7%, correspondant à un facteur correctif de 0,93 est retenu pour cet isotope.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-9,5	4,0
$\sigma$ (%)	3,1	3,2
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	-4,8	8,7

Tableau 4.21 – Tendence des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{243}\text{Am} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

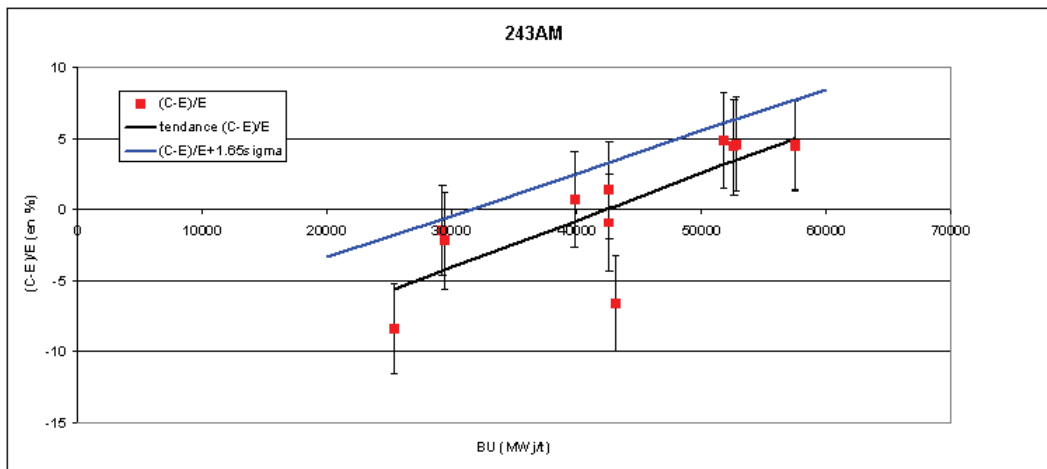


Figure 4.20 – Ecart  $C/E - 1$  pour le rapport de concentrations atomiques  $^{243}\text{Am} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

### $^{243}\text{Cm}$

Le bilan-matière du  $^{243}\text{Cm}$  est fortement sous-estimé (Tableau 4.22 et Figure 4.21) malgré l'augmentation de la formation du  $^{242}\text{Cm}$  due à l'augmentation de 5,5% de la section de capture de l' $^{241}\text{Am}$ . En effet, dans le même temps, la capture du  $^{242}\text{Cm}$  a été diminuée de 6,5%. Après pénalisation de la droite de tendance des écarts  $C/E - 1$  par la droite de tendance des incertitudes, un biais pénalisé de -27,2% est retenu pour le  $^{243}\text{Cm}$ .

TCT (MWj/t)	15000	60000
$C/E - 1$ (%)	-19,3	-10,3
$\sigma$ (%)	4,4	3,7
$[C/E - 1] - 1,65\sigma$ (%)	-27,2	-18,2

Tableau 4.22 – Tendance des écarts  $C/E - 1$  (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{243}\text{Cm} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

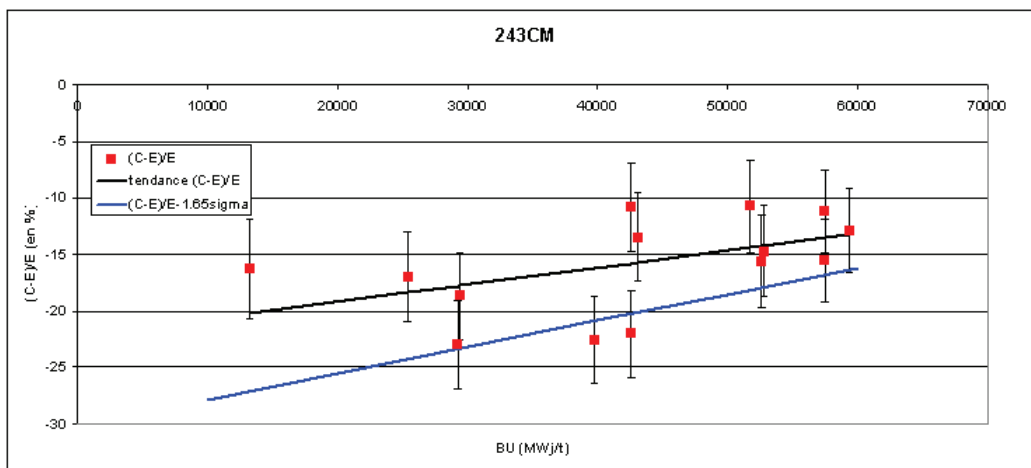


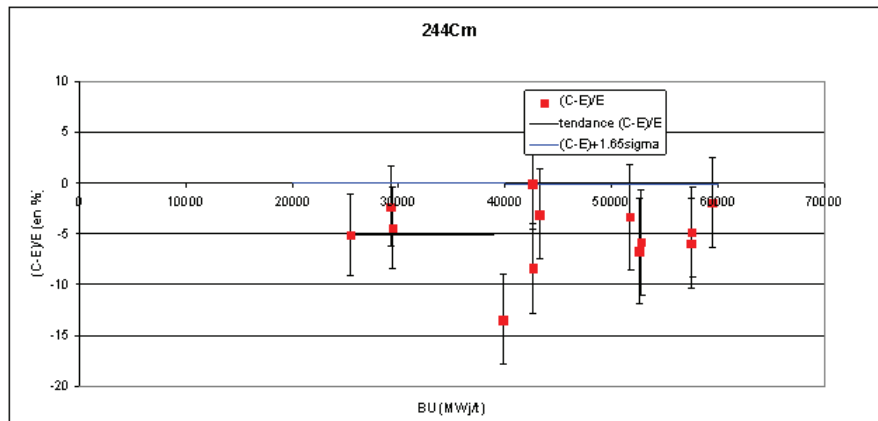
Figure 4.21 – Ecart  $C/E - 1$  pour le rapport de concentrations atomiques  $^{243}\text{Cm} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

**$^{244}\text{Cm}$** 

Le bilan matière du  $^{244}\text{Cm}$  est sous-estimé de 5% sur l'ensemble de la plage de burn-up considérée (Tableau 4.23 et Figure 4.22), cependant son calcul a été amélioré avec JEFF-3.1.1 du fait de la diminution de sa section de capture de l'ordre de 30% ainsi que de l'augmentation de 1% de celle de l' $^{243}\text{Am}$ . Un biais pénalisé nul est donc retenu pour cet isotope.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-5,1	-4,9
$\sigma$ (%)	4,1	4,5
[C/E-1]+1,65 $\sigma$ (%)	0,1	-0,2

**Tableau 4.23 – Tendence des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{244}\text{Cm}$  /  $^{238}\text{U}$  et biais pénalisé**



**Figure 4.22 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{244}\text{Cm}$  /  $^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée**

 **$^{245}\text{Cm}$** 

Le  $^{245}\text{Cm}$  étant formé exclusivement par capture sur le  $^{244}\text{Cm}$ , sa sous-estimation est de l'ordre de grandeur de celle de son père (Tableau 4.24 et Figure 4.23). Pour cet isotope, un biais pénalisé de -16,6% est retenu.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-8,4	-3,9
$\sigma$ (%)	3,2	2,1
[C/E-1]-1,65 $\sigma$ (%)	-16,6	-12,1

**Tableau 4.24 – Tendence des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{245}\text{Cm}$  /  $^{238}\text{U}$  et biais pénalisé**



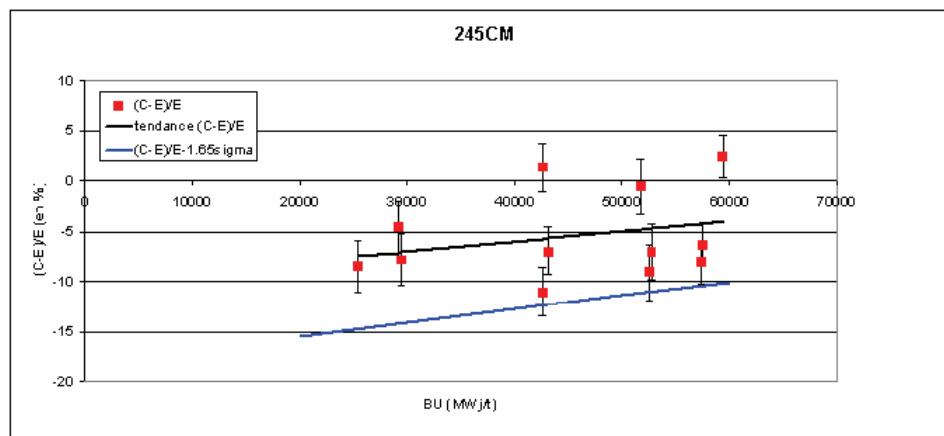


Figure 4.23 – Ecart C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{245}\text{Cm} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

#### 4.2.6 Biais associé à la qualification des produits de fission

##### Isotopes du Samarium

Notons que, comme le présente le Tableau 3.6, les isotopes 149 et 151 du samarium apportent une antiréactivité prépondérante dans le cadre du CBU REP-MOX

##### $^{147}\text{Sm}$

Le  $^{147}\text{Sm}$  présente une tendance à la sous-estimation (Tableau 4.25 et Figure 4.24). Un biais conservatif de -2,7% est retenu pour cet isotope.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-1,6	-3,4
$\sigma$ (%)	1,5	0,7
[C/E-1]+1,65 $\sigma$ (%)	-2,7	-5,8

Tableau 4.25 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{147}\text{Sm} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

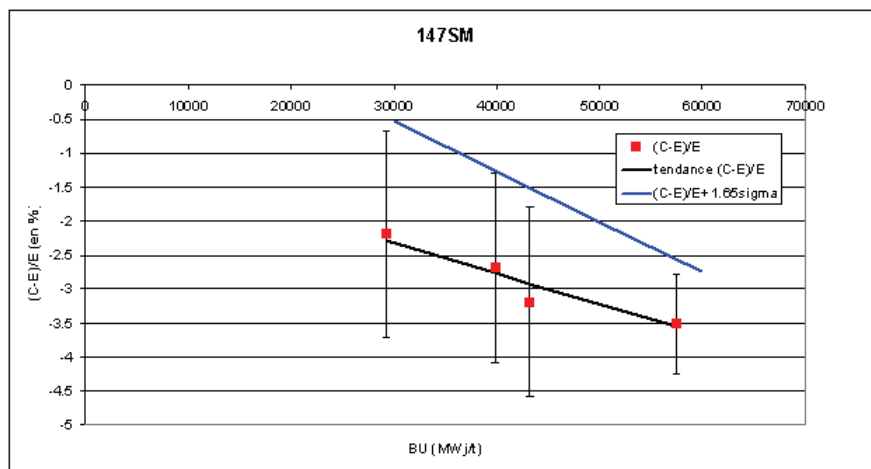


Figure 4.24 – Ecart C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{147}\text{Sm} / ^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

### $^{149}\text{Sm}$

Du fait de l'augmentation de 3% de sa section de capture dans JEFF-3.1.1, le calcul du bilan matière du  $^{149}\text{Sm}$  a été fortement amélioré (Tableau 4.26 et Figure 4.25). Pour cet isotope, on retiendra un biais pénalisé de -4 % contre +10 % (non conservatif) avec JEF-2.2.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-11,8	-2,8
$\sigma$ (%)	4,7	5,1
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	-4,0	4,9

Tableau 4.26 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{149}\text{Sm} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

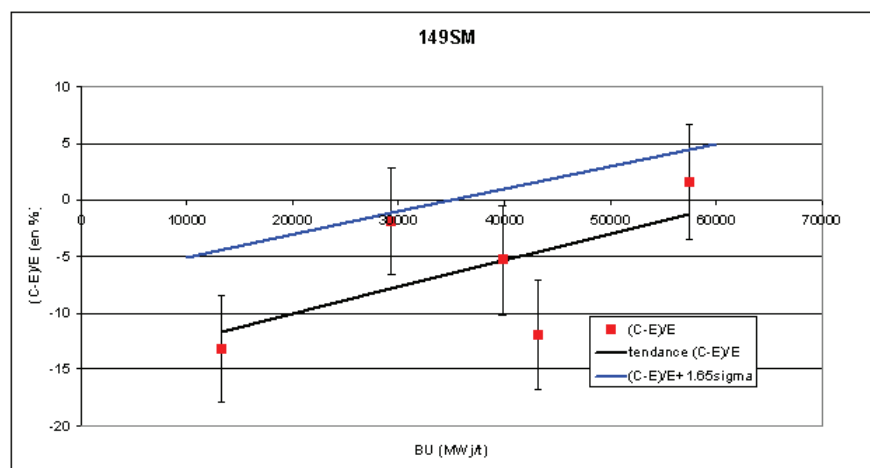


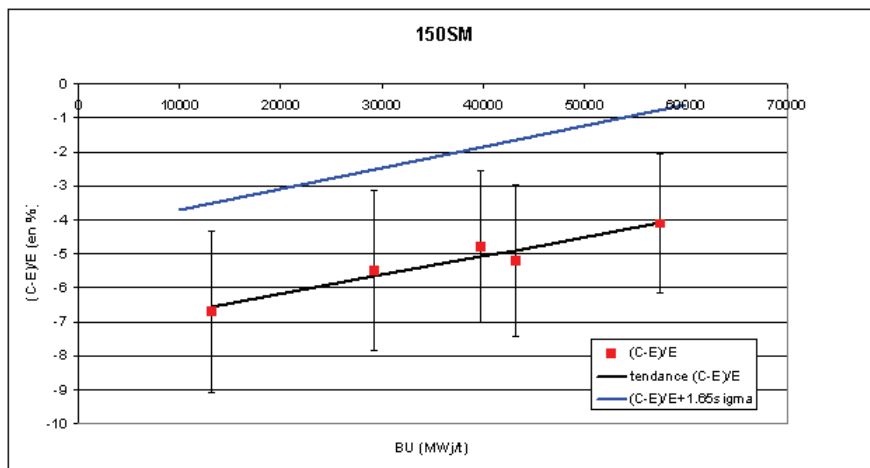
Figure 4.25 – Ecart C/E -1 de  $^{149}\text{Sm}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

**<sup>150</sup>Sm**

De même que le <sup>147</sup>Sm, le <sup>150</sup>Sm présente une tendance à la sous-estimation (Tableau 4.27 et Figure 4.26). Le calcul du bilan-matière de cet isotope est amélioré par le passage de JEF-2.2 à JEFF-3.1.1 du fait de l'augmentation de +3% de la section de capture du <sup>149</sup>Sm dans JEFF-3.1.1. De plus, le maillage fin SHEM permet désormais de prendre en compte l'effet de protection mutuelle des résonances à 20 eV de <sup>238</sup>U et de <sup>150</sup>Sm. Un biais pénalisé de -0,7% est retenu pour cet isotope avec JEFF-3.1.1 contre -4% avec JEF-2.2. Aucune correction n'est donc à apporter à son bilan matière.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-6,4	-3,7
$\sigma$ (%)	2,4	2,1
[C/E-1]+1,65 $\sigma$ (%)	-3,4	-0,7

**Tableau 4.27 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques <sup>150</sup>Sm / <sup>238</sup>U et biais pénalisé**



**Figure 4.26 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques <sup>150</sup>Sm / <sup>238</sup>U avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée**

**<sup>151</sup>Sm**

Le passage de JEF-2.2 à JEFF-3.1.1 a permis l'amélioration du calcul du <sup>151</sup>Sm malgré une tendance à la sous-estimation (Tableau 4.28 et Figure 4.27). Cette sous-estimation provient en partie de celle de son père, le <sup>150</sup>Sm. Le biais pénalisé retenu est de -8 % avec JEFF-3.1.1 contre 11,5 % (non conservatif) avec JEF-2.2.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-9,8	-12,0
$\sigma$ (%)	1,1	2,7
[C/E-1]+1,65 $\sigma$ (%)	-8,0	-9,8

**Tableau 4.28 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques <sup>151</sup>Sm / <sup>238</sup>U et biais pénalisé**

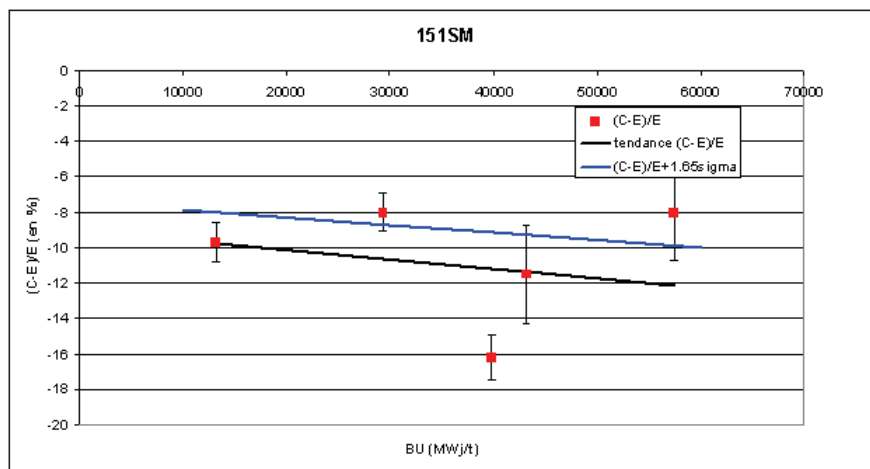


Figure 4.27 – Ecart  $C/E -1$  pour le rapport de concentrations atomiques  $^{151}\text{Sm} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

### $^{152}\text{Sm}$

La tendance à la sous-estimation observée pour les isotopes 147 et 150 concerne également l'isotope 152 comme le montrent le Tableau 4.29 et la Figure 4.28. Un biais conservatif de -3,2% est retenu contre +6,8% avec JEF-2.2.

TCT (MWj/t)	15000	60000
$C/E-1$ (%)	-6,0	-5,6
$\sigma$ (%)	2,2	0,9
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	-3,2	-4,1

Tableau 4.29 – Tendance des écarts  $C/E-1$  (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{152}\text{Sm} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

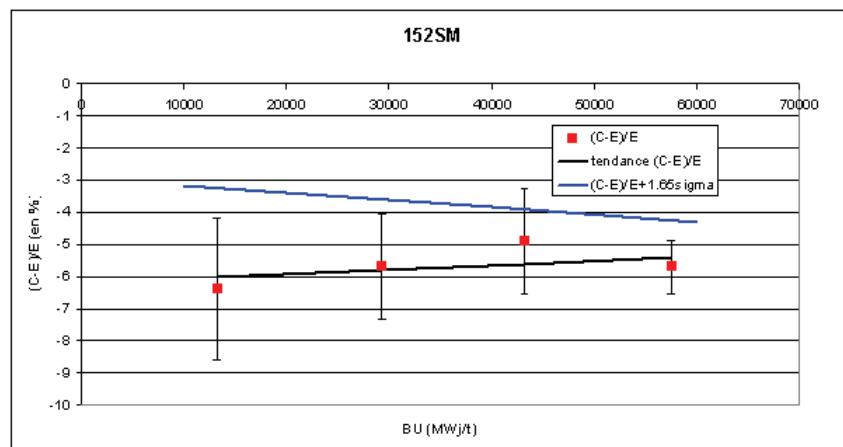


Figure 4.28 – Ecart  $C/E -1$  pour le rapport de concentrations atomiques  $^{152}\text{Sm} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

## Isotopes du Néodyme

 $^{143}\text{Nd}$ 

Le  $^{143}\text{Nd}$  est très bien calculé avec DARWIN2.3 (Tableau 4.30 et Figure 4.29). Les incertitudes associées, de l'ordre de 2 %, varient faiblement sur la plage de burn-up considéré. Le biais de 2 % retenu est très conservatif étant donné la tendance des écart calcul-expérience présentée Figure 4.29.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-0,2	-0,3
$\sigma$ (%)	2,6	1,6
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	2,3	1,4

Tableau 4.30 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{143}\text{Nd} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

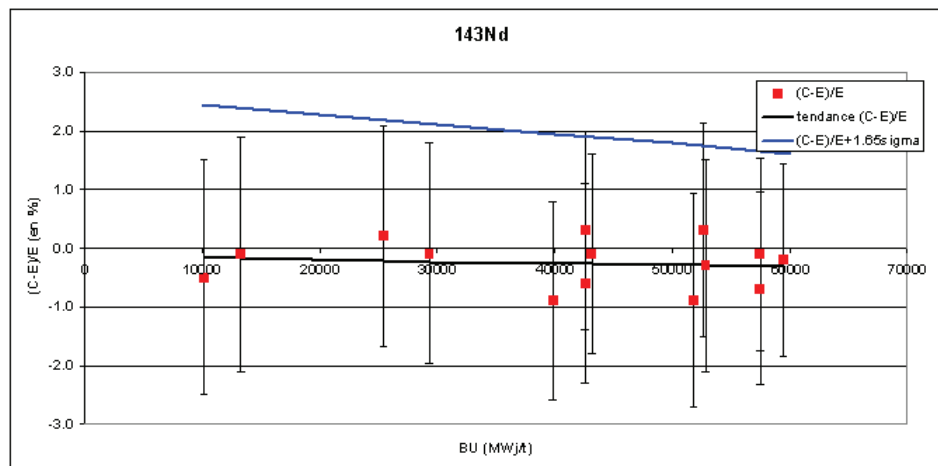


Figure 4.29 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{143}\text{Nd} / ^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

 $^{145}\text{Nd}$ 

De même que le  $^{143}\text{Nd}$ , le  $^{145}\text{Nd}$ , très bien calculé avec DARWIN2.3, présente une légère tendance à la sous-estimation (Tableau 4.31 et Figure 4.30). Le biais pénalisé retenu pour cet isotope est de 2,1 %. Il est très conservatif au vue des tendances des écarts calcul-expérience observés et correspond à un facteur correctif de 0,98.

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-0,3	-0,7
$\sigma$ (%)	2,1	1,6
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	2,1	1,2

Tableau 4.31 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{145}\text{Nd} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

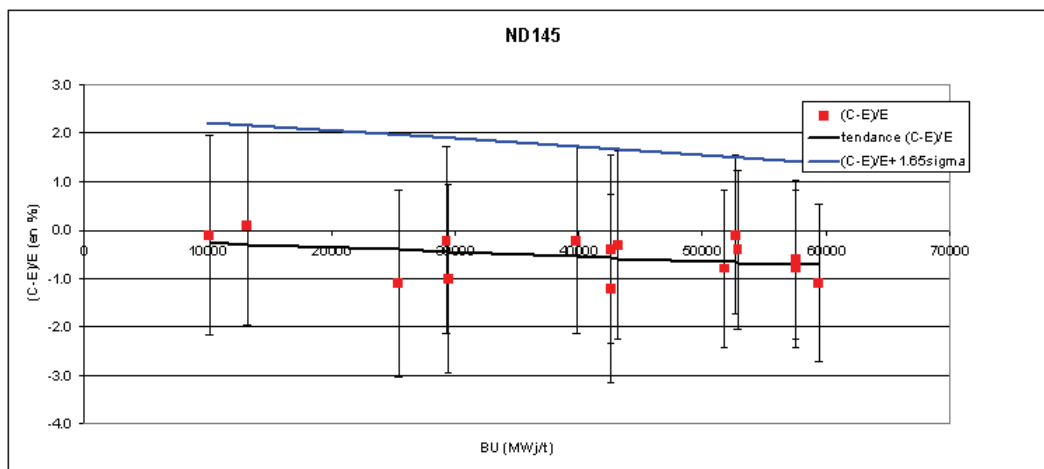


Figure 4.30 – Ecart  $C/E - 1$  pour le rapport de concentrations atomiques  $^{145}\text{Nd} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

### $^{133}\text{Cs}$

Le bilan-matière du  $^{133}\text{Cs}$  est bien calculé avec JEFF-3.1.1 à mieux que 1 %, les écarts  $(C-E)/E$  variant très faiblement sur la plage du burn-up considérée comme l'illustrent le Tableau 4.32 et la Figure 4.31. Le biais pénalisé retenu est de 3,5% correspondant à un facteur correctif de 0,97.

TCT (MWj/t)	15000	60000
$C/E-1$ (%)	0,4	0,7
$\sigma$ (%)	2,1	1,7
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	3,2	3,5

Tableau 4.32 – Tendance des écarts  $C/E-1$  (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{133}\text{Cs} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

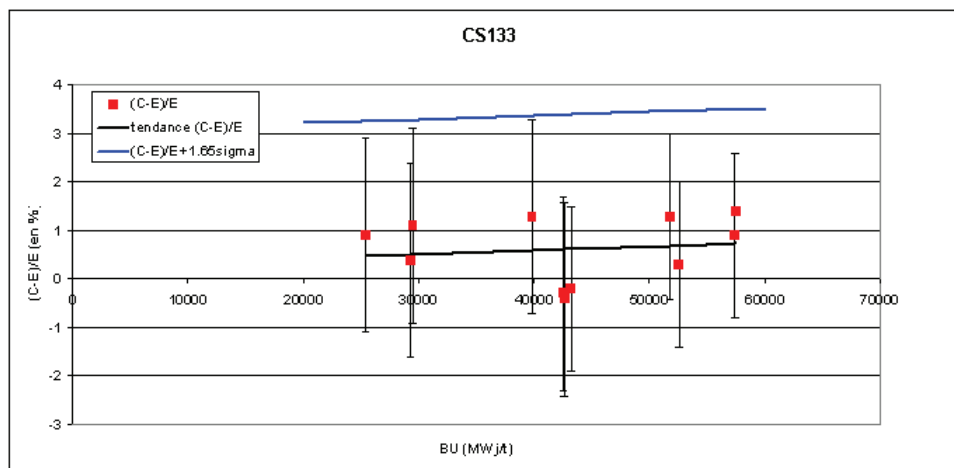


Figure 4.31 – Ecart  $C/E - 1$  pour le rapport de concentrations atomiques  $^{133}\text{Cs} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

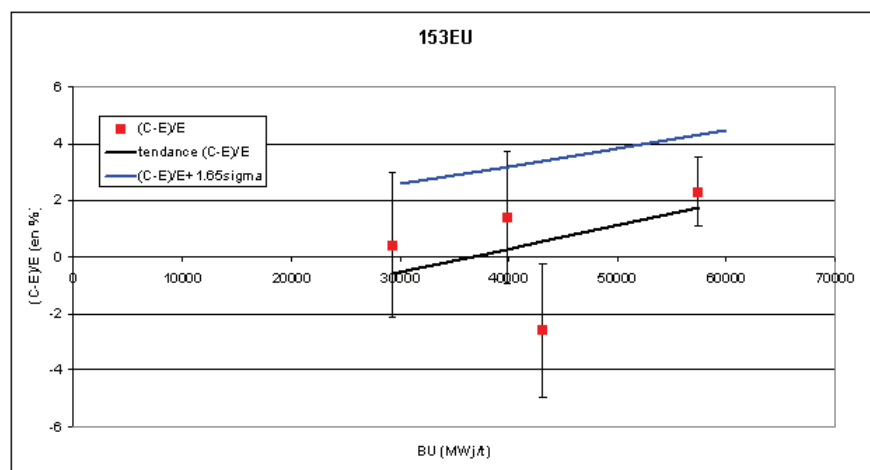
**$^{153}\text{Eu}$** 

De même que pour le  $^{155}\text{Gd}$ , le passage de JEF-2.2 à JEFF-3.1.1 avec augmentation de +3% de la section de capture du  $^{153}\text{Eu}$ , conduit à la réduction du biais retenu pour cet isotope : 4,3% (non conservatif) contre +6,7% avec JEF-2.2 (Tableau 4.33).

TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-1,1	2,5
$\sigma$ (%)	2,7	1,2
[C/E-1]+1,65 $\sigma$ (%)	1,6	4,3

**Tableau 4.33 – Tendance des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{153}\text{Eu}$  /  $^{238}\text{U}$  et biais pénalisé**

Les écarts C/E -1 de  $^{153}\text{Eu}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et la tendance linéaire associée sont présentés Figure 4.32.



**Figure 4.32 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{153}\text{Eu}$  /  $^{238}\text{U}$  avec DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée**

 **$^{155}\text{Gd}$** 

Du fait de l'amélioration du bilan-matière de ses pères, l' $^{155}\text{Eu}$  et le  $^{154}\text{Gd}$  (Tableau 4.34 et Figure 4.33), et de l'augmentation de la constante de décroissance de l' $^{155}\text{Eu}$ , le bilan-matière du  $^{155}\text{Gd}$ , nettement surestimé avec JEF-2.2 s'est amélioré avec JEFF-3.1.1 (Figure 4.34).



**Figure 4.33 – Chaîne de filiation du  $^{155}\text{Gd}$**

Ainsi, la réduction des écarts C/E observée se traduit par celle du biais retenu : -4,3% contre +13,6% (non conservatif) avec JEF-2.2.



TCT (MWj/t)	15000	60000
C/E-1 (%)	-6,6	-8,0
$\sigma$ (%)	4,5	2,3
$[C/E-1]+1,65\sigma$ (%)	-4,3	-4,8

Tableau 4.34 – Tendence des écarts C/E-1 (%) en fonction du TC pour le rapport de concentrations atomiques  $^{155}\text{Gd} / ^{238}\text{U}$  et biais pénalisé

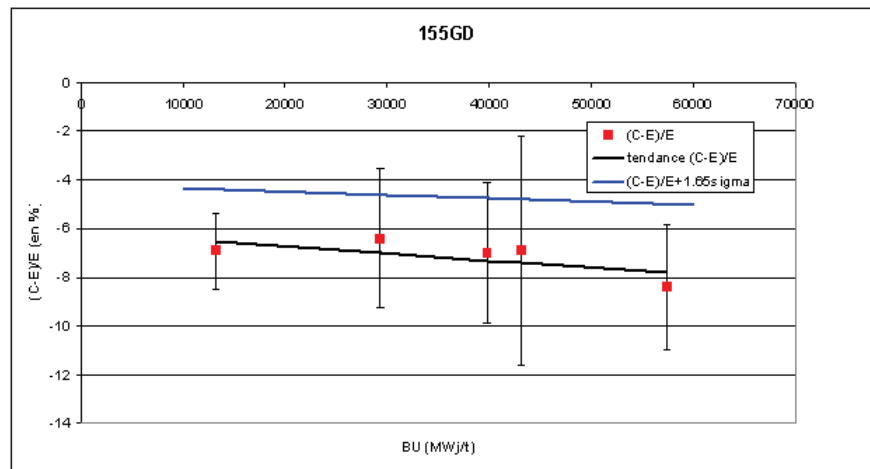


Figure 4.34 – Ecarts C/E -1 pour le rapport de concentrations atomiques  $^{155}\text{Gd} / ^{238}\text{U}$  avec DAR-WIN2.3/SHEM/CEA2005V4 et tendance linéaire associée

### 4.3 Analyse des données nucléaires des produits de fission métalliques

Parmi les 15 produits de fission retenus dans le cadre de la mise en place d'une méthodologie Crédit Burn-up concernant des combustibles REP-MOx figurent les cinq isotopes métalliques suivants :  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{103}\text{Rh}$  (principal contributeur) et  $^{109}\text{Ag}$  (en vert dans le Tableau 4.35). L'importance de ces isotopes dans le contexte du CBU REP-MOx est illustrée dans le Tableau 4.35.

Produit de fission	rang	antiréactivité MOx (pcm)	Contribution (%)
<sup>103</sup> Rh	1	-1800	19
<sup>149</sup> Sm	2	-1490	15
<sup>155</sup> Gd	3	-1110	12
<sup>151</sup> Sm	4	-830	9
<sup>143</sup> Nd	5	-690	7
<sup>133</sup> Cs	6	-680	7
<sup>109</sup> Ag	7	-540	6
<sup>152</sup> Sm	8	-480	5
<sup>153</sup> Eu	9	-450	5
<sup>99</sup> Tc	10	-440	5
<sup>145</sup> Nd	11	-280	3
<sup>101</sup> Ru	12	-230	2
<sup>147</sup> Sm	13	-210	2
<sup>95</sup> Mo	14	-200	2
<sup>150</sup> Sm	15	-190	2
<b>Total</b>		<b>-9620</b>	<b>-9800</b>
<b>Total PF métalliques</b>		<b>-3210</b>	<b>33</b>

**Tableau 4.35 – Importance des produits de fission métalliques dans le cadre du CBU REP-MOx BU=40GWj/t TR=5 ans**

On constate que leur contribution à l'antiréactivité totale d'un combustible REP-MOx irradié à 40 GWj/t et refroidi pendant 5 ans est de 33 %. De nouvelles analyses ont été effectuées en 2010 dans l'installation ATALANTE du CEA Marcoule sur un second tronçon du crayon E05 appartenant à la zone centrale et irradié à 40 GWj/t dans le réacteur EDF Dampierre-2 dans le cadre de la qualification du formulaire du cycle du combustible DARWIN2.3 pour le calcul du bilan matière des combustibles REP-MOx à haut taux de combustion. Ces nouvelles analyses ont pour la première fois fourni des résultats fiables concernant les produits de fission métalliques retenus dans le cadre du Crédit Burn-up<sup>4</sup>. Ne disposant dans la base de qualification du formulaire que d'une seule valeur d'écart calcul-expérience pour chacun de ces cinq isotopes, il est donc impossible de pouvoir en dégager une tendance en fonction du burn-up pour en déduire un facteur correctif associé à appliquer au bilan matière en amont du calcul de criticité. Le but de cette étude est donc de pouvoir quantifier l'impact des incertitudes liées aux données nucléaires de ces isotopes sur le calcul de leur bilan matière. Il va donc falloir au préalable identifier les données ayant un impact prépondérant sur le calcul du bilan matière des PF métalliques. Pour chacun d'eux seront décrites leurs voies de formation et de disparition avec analyse des données nucléaires associées. La cohérence des données de JEFF-3.1.1 avec les données des autres évaluations disponibles (ENDF/B-VII.V0, JENDL4) sera examinée grâce à JANIS-3.3 [BM-14] : rendements de fission cumulés dans le domaine thermique et leurs incertitudes associées, données de décroissance des isotopes impliqués dans la formation des quatre PF étudiés et sections efficaces de capture. En préalable seront décrits brièvement les modules et méthodes du formulaire DARWIN utilisés pour la réalisation de cette étude. La fonctionnalité « Perturbation » du module PEPIN2 va permettre, à l'issue du calcul d'évolution, d'évaluer si nécessaire la sensibilité du calcul de bilan matière des PF métalliques à des variations imposées de leur constante de décroissance ou de leur section efficace ( $n$ ,  $\gamma$ ). Une analyse approchée de la sensibilité relative aux incertitudes associées aux rendements de fission peut être effectuée en se basant sur les données contenues dans le fichier « taux de réaction » sachant que le terme d'alimentation

4. Les produits de fission métalliques sont particulièrement difficiles à analyser car difficiles à dissoudre. De plus, les solutions de dissolution sont sujettes à des phénomènes de re-précipitation.

par fission d'un PF considéré  $X_i$  peut s'écrire sous la forme [BM-15] :

$$\sum_F X_{i,F} = N_f \times \sum_F \int_0^\infty Y_{X_i,F}(E) R_f(E) dE$$

avec  $Y_{X_i,F}$  : rendement de fission cumulé de l'isotope fissile F et E l'énergie. Les répartitions de fission RF ainsi que le nombre de fissions  $N_f$  (puissance totale divisée par l'énergie moyenne de fission) par palier peuvent être extraits du fichier « taux de réaction ».

### 4.3.1 Chaîne de calcul

L'enchaînement des modules du formulaire DARWIN décrits ci-après s'appuie sur le contenu du fichier « SAPHYB » créé par APOLLO2.8. Ce fichier contient les données neutroniques d'irradiation : spectres et sections efficaces autoprotégées en fonction du taux de combustion en particulier, calculées à partir du schéma de calcul recommandé 'CYCLE2008' des combustibles REP-MOx. Le module INVERSION du formulaire DARWIN2.3 est utilisé pour évaluer les différentes contributions des différentes chaînes de filiation à la formation des isotopes étudiés et d'identifier les isotopes têtes de chaîne. Sa mise en œuvre s'effectue selon l'enchaînement suivant :

- A partir de la SAPHYB issue du calcul APOLLO2.8, le module PSAPHY crée le fichier des spectres neutroniques au format attendu par le module INTERPEP ;
- le module INTERPEP condense à un groupe les sections efficaces multigroupes, calcule le flux total en fonction du burn-up et les taux de fission microscopiques des noyaux lourds ;
- Les résultats de ces opérations sont stockés dans un fichier dit « fichier taux de réaction » ;
- le calcul d'évolution sous flux avec refroidissements éventuels est effectué par le module PEPIN2 en se basant sur l'historique d'irradiation d'APOLLO2.8 ;
- le module INVERSION peut alors identifier et quantifier les différentes voies de formations des isotopes étudiés.

### 4.3.2 Analyse par isotope

Les résultats présentés concernent un combustible REP-MOx irradié à 50 GWj/t (crayon E09 du programme Dampierre 2 –HTC appartenant à la zone centrale de teneur Pu de l'assemblage). Pour chacun des cinq produits de fission métalliques du CBU sera présentée dans ce paragraphe l'analyse des données nucléaires liées à leur formation et à leur disparition. La sensibilité du calcul de bilan matière de chacun de ces isotopes aux données nucléaires provenant de l'évaluation JEFF-3.1.1 sera ensuite commentée. L'abréviation RF désignera les rendements de fission cumulés.

#### **<sup>103</sup>Rh**

#### *Formation du <sup>103</sup>Rh*

Le <sup>103</sup>Nb, le <sup>103</sup>Mo et le <sup>103</sup>Zr sont à l'origine de 77% de la formation du <sup>103</sup>Rh selon la répartition présentée dans le Tableau 4.36 :

Isotope tête de chaîne	Contribution totale à la formation (%)
$^{103}\text{Nb}$	40,4
$^{103}\text{Mo}$	29,5
$^{103}\text{Zr}$	7,5

Tableau 4.36 – Synthèse des voies de formation du Rhodium 103

Les trois voies de formation principales détaillées du  $^{103}\text{Rh}$  étant les suivantes :

Contribution (%)	Chaîne de formation
40	$^{103}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{103}\text{Mo}(\beta^-) \rightarrow ^{103}\text{Tc}(\beta^-) \rightarrow ^{103}\text{Ru}(\beta^-) \rightarrow ^{103\text{m}}\text{Rh}(\text{TI}) \rightarrow ^{103}\text{Rh}$
29,2	$^{103}\text{Mo}(\beta^-) \rightarrow ^{103}\text{Tc}(\beta^-) \rightarrow ^{103}\text{Ru}(\beta^-) \rightarrow ^{103\text{m}}\text{Rh}(\text{TI}) \rightarrow ^{103}\text{Rh}$
7,4	$^{103}\text{Zr}(\beta^-) \rightarrow ^{103}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{103}\text{Mo}(\beta^-) \rightarrow ^{103}\text{Tc}(\beta^-) \rightarrow ^{103}\text{Ru}(\beta^-) \rightarrow ^{103\text{m}}\text{Rh}(\text{TI}) \rightarrow ^{103}\text{Rh}$

Tableau 4.37 – Détail des trois principales voies de formation du  $^{103}\text{Rh}$ 

Comme le montre le Tableau 4.38, les deux isotopes têtes de chaîne principaux, le niobium 103 et le molybdène 103, sont principalement formés par fission du plutonium 239. Concernant le zirconium 103, les fissions du plutonium 239, du plutonium 241 et de l'uranium 238 interviennent en proportions équivalentes dans sa formation.

	$^{103}\text{Nb}$	$^{103}\text{Mo}$	$^{103}\text{Zr}$
$^{239}\text{Pu}$	54,3	76,8	31,7
$^{241}\text{Pu}$	34,9	19,7	40,2
$^{238}\text{U}$	7,9	0,9	25,6
$^{235}\text{U}$	0,9	0,6	1,1

Tableau 4.38 – Analyse des voies de formation du  $^{103}\text{Rh}$  : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les trois principales têtes de chaîne

#### Analyse des données liées aux voies de formation

Intéressons-nous tout d'abord aux rendements de fission cumulés des principales têtes de chaîne. Le niobium 103 est à l'origine de 40% de la formation de  $^{103}\text{Rh}$  et est issu à 90% des fissions de plutonium 239 et du plutonium 241.

$^{103}\text{Nb}$		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
$^{239}\text{Pu}$	RF Domaine thermique	3,43E-02	3,43E-02	2,93E-02	2,93E-02
	$\sigma$	5,97E-03	3,07E-03	9,37E-03	9,37E-03
	Incertitude relative	17 %	9 %	32 %	32 %
$^{241}\text{Pu}$	RF Domaine thermique	5,00E-02	4,78E-02	5,02E-02	5,02E-02
	$\sigma$	9,49E-03	2,89E-03	1,15E-02	1,15E-02
	Incertitude relative	19 %	6 %	23 %	23 %

Tableau 4.39 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du  $^{103}\text{Nb}$

<sup>103</sup> Nb	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
<b>Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1</b>	-14 %	5 %
<b>Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1</b>	-14 %	5 %
<b>Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1</b>	0 %	5 %

**Tableau 4.40 – Ecart entre les différentes évaluations considérées**

Les incertitudes associées aux valeurs des rendements couvrent les écarts observés entre les évaluations (Tableaux 4.39 et 4.40). Pour une variation des valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 dans les limites des incertitudes relatives de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la production de <sup>103</sup>Rh ayant pour origine le <sup>103</sup>Nb est de 6%. Le molybdène 103 est responsable à près de 30% de la formation de <sup>103</sup>Rh. Il est lui-même formé à près de 80% par les fissions du plutonium 239, le reste de sa production étant assurée par celles du plutonium 241.

<sup>103</sup> Mo		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
<sup>239</sup> Pu	<b>RF Domaine thermique</b>	6,77E-02	6,73E-02	6,74E-02	6,74E-02
	$\sigma$	6,00E-03	8,51E-04	1,55E-02	1,55E-02
	<b>Incertitude relative</b>	9 %	1 %	23 %	23 %
<sup>241</sup> Pu	<b>RF Domaine thermique</b>	7,06E-02	6,49E-02	6,75E-02	6,76E-02
	$\sigma$	9,34E-03	3,18E-03	1,079E-02	1,079E-02
	<b>Incertitude relative</b>	13 %	5 %	16 %	16 %

**Tableau 4.41 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du <sup>103</sup>Mo**

<sup>103</sup> Mo	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
<b>Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1</b>	1 %	9 %
<b>Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1</b>	0 %	4 %
<b>Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1</b>	0 %	4 %

**Tableau 4.42 – Ecart entre les différentes évaluations considérées**

Les valeurs des rendements sont concordantes entre les différentes évaluations. JEFF-3.1.1 conduit aux incertitudes les plus faibles en comparaison d'ENDF/BVII.V0, de JENDL4 et de JEF-2.2 (Tableaux 4.41 et 4.42). On remarque que pour cet isotope, les incertitudes sur les rendements de fission du <sup>239</sup>Pu et <sup>240</sup>Pu de JEF-2.2 ont été révisées et améliorées dans JEFF-3.1.1. En faisant varier les valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 dans les limites des incertitudes relatives de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la formation de rhodium 103 due au molybdène 103 est de 2%. Le zirconium 103 est à l'origine d'environ 8% de la production de <sup>103</sup>Rh. Sa formation se partage presque équitablement entre les fissions des plutoniums 239 et 241 et de l'uranium 238.

<sup>103</sup> Zr		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
<sup>239</sup> Pu	RF Domaine thermique	3,12E-03	3,26E-03	2,25E-03	2,25E-03
	$\sigma$	1,07E-03	1,05E-03	1,43E-03	1,43E-03
	Incertitude relative	23 %	34 %	64 %	64 %
<sup>241</sup> Pu	RF Domaine thermique	9,83E-03	8,18E-03	1,04E-02	1,04E-02
	$\sigma$	4,91E-03	2,24E-03	2,40E-03	2,40E-03
	Incertitude relative	50 %	27 %	23 %	23 %
<sup>238</sup> U	RF Domaine rapide	2,25E-02 (400 keV)	2,17E-02	2,78E-02 (500 keV)	2,75E-02
	$\sigma$	6,33E-03	3,33E-03	6,40E-03	6,39E-03
	Incertitude relative	28 %	11 %	23 %	23 %

Tableau 4.43 – Rendements de fission cumulés dans les domaines thermique et rapide du <sup>103</sup>Zr

<sup>103</sup> Zr	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu	<sup>238</sup> U
Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1	-4 %	20 %	4 %
Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1	-31 %	27 %	28 %
Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1	-31 %	27 %	27 %

Tableau 4.44 – Ecart entre les différentes évaluations considérées

Les remarques suivantes peuvent être faites d'après les Tableaux 4.43 et 4.44 :

- des écarts importants existent entre les différentes évaluations : de l'ordre de 30% entre ENDF/B-VII.V0 et JENDL 4 pour les rendements de fission du <sup>239</sup>Pu mais ils restent de l'ordre de grandeur des incertitudes relatives associées ;
- les incertitudes relatives sont importantes : jusqu'à 64% sur le rendement de fission du <sup>239</sup>Pu pour ENDF/B-VII.V0 et JENDL4. On remarque l'amélioration des incertitudes absolues sur les rendements de fission du <sup>239</sup>Pu et <sup>240</sup>Pu vers le <sup>103</sup>Mo dans JEFF-3.1.1.

Analysons les constantes de décroissance des isotopes alimentant le Rhodium 103 présentes dans le Tableau 4.45.

Hormis le <sup>103</sup>Ru présentant une période de l'ordre de 40 jours, tous les isotopes alimentant la production de <sup>103</sup>Rh par leur décroissance sont à vie courte (période inférieure à une heure). Toutes les valeurs des périodes sont concordantes. Notons qu'en comparaison des valeurs fournies dans JEF-2.2, la période du <sup>103</sup>Mo a été revue à la hausse de 3% dans JEFF-3.1.1 et celle du <sup>103</sup>Tc de 8,4%. Le calcul de la concentration du <sup>103</sup>Rh ne présente aucune incertitude notable liée à ces données.

Père	T1/2			Fils	Réaction	Branchement (%)		
	JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL			JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL
<sup>103</sup> Zr	1.3 ± 0.1	1.3 ± 0.1	1.3 ± 0.1	<sup>103</sup> Nb	β-	100	100	100
<sup>103</sup> Nb	1.5 ± 0.2	1.5 ± 0.2	1.5	<sup>103</sup> Mo	β-	100	100	99.9
<sup>103</sup> Mo	67.9 ± 0.6	67.5 ± 1.5	67.5 ± 1.5	<sup>103</sup> Tc	β-	100	100	100
<sup>103</sup> Tc	54.2 ± 0.8	54.2 ± 0.8	54.2 ± 0.8	<sup>103</sup> Ru	β-	100	100	100
<sup>103</sup> Ru	39.26j ± 28min	39.26j ± 28min	39.26j ± 30min	<sup>103m</sup> Rh	β-	98.8	100	100
<sup>103m</sup> Rh	56.11min ±	56.11min ± 0.54	56.11min ± 1.2	<sup>103</sup> Rh	IT	100	100	100

Tableau 4.45 – Données de décroissance des isotopes contribuant à la formation du <sup>103</sup>Rh*Disparition du <sup>103</sup>Rh*

Intéressons-nous à présent aux voies de disparition du <sup>103</sup>Rh. Le Rhodium 103 est un isotope stable disparaissant sous irradiation par capture radiative pour donner le <sup>104m</sup>Rh et le <sup>104</sup>Rh selon les branchements (valeurs de rendements issues de JEFF-3.1.1) :



Evaluation	$\sigma(n,\gamma)$ à 2200 m/s
JEF-2.2	146,342
JEFF-3.1.1	142,742
ENDF/B-VII.V0	145,043
JENDL-4	133,136

Tableau 4.46 – Valeurs de section efficace (n,γ) du <sup>103</sup>Rh à 2200 m/s

JENDL 4 propose la valeur minimale parmi toutes les évaluations avec une diminution de 7% par rapport à JENDL 3.3. Dans JEFF-3.1.1, la valeur a été revue à la baisse de -3% par rapport à JEF-2.2 sur la base de nouvelles mesures de transmission réalisées par le CEA (Dupont, 2005) à l'IRMM. Cette réduction est en accord avec les tendances observées lors de l'interprétation du programme d'oscillation MAESTRO. Cette valeur reste cohérente avec celle donnée par ENDF/B-VII.V0, ce que montre le Tableau 4.46. Une étude de perturbation montre qu'une modification de 7 % de la section de capture du <sup>103</sup>Rh n'engendre qu'un impact de 1,5 % sur son bilan matière.

*Conclusion*

Les incertitudes des rendements de fission associés au niobium 103 dans JEFF-3.1.1, contribuant principalement à la formation du rhodium 103, constituent la principale source d'incertitude pour le calcul de la concentration de celui-ci. Leur impact est de 8%. Les incertitudes, parfois très élevées (jusqu'à 64% dans le cas du <sup>103</sup>Zr pour les rendements de fission relatifs au plutonium 239), des données relatives aux autres têtes de chaîne ont un impact cumulé du même ordre (6%). L'incertitude résultant de la précision associée aux rendements des trois isotopes têtes de chaîne principaux sur le calcul de la concentration du rhodium 103



dans les combustibles MOx est estimée à 10%.

### $^{109}\text{Ag}$

Les deux principaux contributeurs à la formation de  $^{109}\text{Ag}$  identifiés par le module INVERSION du formulaire DARWIN sont le ruthénium 109 et le technétium 109 (Tableau 4.47).

Isotope tête de chaîne	Contribution totale à la formation (%)
$^{109}\text{Ru}$	49,5
$^{109}\text{Tc}$	21,9

**Tableau 4.47 – Synthèse des voies de formation de l'Argent 109**

Les quatre principales voies de formations de  $^{109}\text{Ag}$  sont présentées ci-après :

Contribution (%)	Chaîne de formation
24.7	$^{109}\text{Ru}(\beta^-) \rightarrow ^{109}\text{Rh}(\beta^-) \rightarrow ^{109}\text{Pd}(\beta^-) \rightarrow ^{109\text{m}}\text{Ag}(\text{TI}) \rightarrow ^{109}\text{Ag}$
24.7	$^{109}\text{Ru}(\beta^-) \rightarrow ^{109}\text{Rh}(\beta^-) \rightarrow ^{109\text{m}}\text{Pd}(\text{TI}) \rightarrow ^{109}\text{Pd}(\beta^-) \rightarrow ^{109\text{m}}\text{Ag}(\text{TI}) \rightarrow ^{109}\text{Ag}$
11	$^{109}\text{Tc}(\beta^-) \rightarrow ^{109}\text{Ru}(\beta^-) \rightarrow ^{109}\text{Rh}(\beta^-) \rightarrow ^{109}\text{Pd}(\beta^-) \rightarrow ^{109\text{m}}\text{Ag}(\text{TI}) \rightarrow ^{109}\text{Ag}$
11	$^{109}\text{Tc}(\beta^-) \rightarrow ^{109}\text{Ru}(\beta^-) \rightarrow ^{109}\text{Rh}(\beta^-) \rightarrow ^{109\text{m}}\text{Pd}(\text{TI}) \rightarrow ^{109}\text{Pd}(\beta^-) \rightarrow ^{109\text{m}}\text{Ag}(\text{TI}) \rightarrow ^{109}\text{Ag}$

**Tableau 4.48 – Détail des voies de formation de l' $^{109}\text{Ag}$**

Le Tableau 4.49 indique les répartitions des fissions conduisant à la formation des deux principales têtes de chaîne identifiées, en fonction des isotopes fissiles.

	$^{109}\text{Ru}$	$^{109}\text{Tc}$
$^{239}\text{Pu}$	55,965	37,676
$^{241}\text{Pu}$	41,162	61,484
$^{238}\text{U}$	négligeable	0,542
$^{235}\text{U}$	négligeable	0,061

**Tableau 4.49 – Analyse des voies de formation de  $^{109}\text{Ag}$  : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les deux principales têtes de chaîne**

La formation du ruthénium 109 est approximativement due pour moitié aux fissions du plutonium 239 et pour moitié aux fissions du plutonium 241. La formation du technétium 109 est due en majorité aux fissions du plutonium 241 de même que celle du technétium 108.

### *Analyse des données liées aux voies de formation*

D'après le Tableau 4.47, le ruthénium 109 et le technétium 109 sont les deux isotopes principaux à l'origine de la formation de  $^{109}\text{Ag}$ . Ce sont donc les données relatives à ces deux isotopes qui vont être étudiées ici. Le Tableau 4.50 présente les valeurs des rendements de fission dans le domaine thermique du  $^{109}\text{Ru}$ , à l'origine de près de la moitié de  $^{109}\text{Ag}$  formé.

<sup>109</sup> Ru		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
<sup>239</sup> Pu	RF Domaine thermique	7.59E-03	1.43E-02	9.08E-03	7.0E-03
	$\sigma$	1.13E-03	2.36E-03	5.81E-03	4.45E-03
	Incertitude relative	15 %	17 %	64 %	64 %
<sup>241</sup> Pu	RF Domaine thermique	1.10E-02	2.75E-02	1.92E-02	1.16E-02
	$\sigma$	2.99E-03	4.02E-03	1.23E-03	1.06E-03
	Incertitude relative	27 %	15 %	64 %	91 %

Tableau 4.50 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du <sup>109</sup>Ru

Les écarts entre les différentes évaluations considérées sont présentés Tableau 4.51.

<sup>109</sup> Ru	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1	-47 %	-60 %
Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1	-37 %	-30 %
Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1	-51 %	-58 %

Tableau 4.51 – Ecart entre les différentes évaluations considérées

On remarque que les valeurs des incertitudes fournies par ENDF/B-VII et JENDL sont très importantes et que les incertitudes les plus faibles proviennent de JEFF-3.1.1. En faisant varier les valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 dans les limites des incertitudes relatives de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la formation de l'argent 109 due au ruthénium 109 est de 8%. Le <sup>109</sup>Tc est à l'origine de la formation de 22% de l'<sup>109</sup>Ag. Le Tableau 4.52 présente les valeurs des rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du plutonium 239 et du plutonium 241 responsables de 99% de sa formation.

<sup>109</sup> Tc		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
<sup>239</sup> Pu	RF Domaine thermique	3.02E-03	3.19E-03	4.10E-03	4.10E-03
	$\sigma$	1.15E-03	9.91E-04	2.62E-03	2.62E-03
	Incertitude relative	38 %	31 %	64 %	64 %
<sup>241</sup> Pu	RF Domaine thermique	1.02E-02	1.11E-02	1.30E-02	1.31E-02
	$\sigma$	4.55E-03	2.35E-03	3.00E-03	3.00E-03
	Incertitude relative	45 %	21 %	23 %	23 %

Tableau 4.52 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du <sup>109</sup>Tc

Les écarts entre les différentes évaluations considérées sont présentés Tableau 4.53.

<sup>109</sup> Tc	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1	-5 %	-8 %
Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1	28 %	17 %
Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1	28 %	17 %

Tableau 4.53 – Ecart entre les différentes évaluations considérées

Les valeurs proposées par ENDF/B-VII.V0 et JENDL sont élevées ainsi que les valeurs des incertitudes qui leur sont associées mais les écarts observés entre les différentes évaluations sur les rendements de fission

sont couverts par les importantes incertitudes associées. La sensibilité du bilan matière de l'argent 109 formé à partir du  $^{109}\text{Tc}$  vis-à-vis des incertitudes des données issues de JEFF-3.1.1 est de l'ordre de 5% (impact cumulé des incertitudes des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241).

Analysons les constantes de décroissance des isotopes alimentant l'Argent 109 grâce au Tableau 4.54.

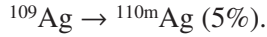
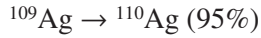
Père	T1/2			Fils	Réaction	Branchement (%)		
	JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL			JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL
<sup>109</sup> Ru	34.5± 0.5	34.5± 1	34.5± 0.5	<sup>109</sup> Rh	β-	100	100	100
<sup>109</sup> Tc	0.86 ±0.04	0.86 ±0.04	1.4 ±0.0	<sup>109</sup> Ru	β-	99.92	99.92	99.84
				<sup>109</sup> Ru	β-,n	0.08	0.08	0.16
<sup>108</sup> Tc	5.17±0.07	5.17±0.07	5.17±0.07	<sup>108</sup> Ru	β-	100	100	100
<sup>108</sup> Ru	4.55min±3s	4.55min±3s	4.55min±3s	<sup>108</sup> Rh	β-	100	100	100
<sup>109</sup> Rh	1.3min±2s	1.3min±2s	1.3min±2s	<sup>109</sup> Pd	β-	100	100	100
<sup>108</sup> Mo	1.09±0.02	1.09±0.02	1.09±0.02	<sup>108</sup> Tc	β-	100	100	100
<sup>109</sup> Mo	0.5±0.2	0.53±0.06	1.72±0.0	<sup>109</sup> Tc	β-	99.47	99.47	99.93
				<sup>109</sup> Tc	β-,n	0.53	0.53	0.07
<sup>107</sup> Tc	21.2±0.2	21.2±0.2	21.2±0.2	<sup>107</sup> Ru	β-	100	100	100
<sup>108m</sup> Rh	6min±18s	6min±18s	6min±18s	<sup>108</sup> Pd	β-	100	100	100
<sup>107</sup> Mo	3.5±0.5	3.5±0.5	3.5±0.0	<sup>107</sup> Tc	β-	100	100	100
<sup>109m</sup> Pd	4.69min±0.6s	4.69min±0.6s	4.69min±0.6s	<sup>109</sup> Pd	IT	100	100	100
<sup>107</sup> Ru	3.75min±3s	3.75min±3s	3.75min±3s	<sup>107</sup> Rh	β-	100	100	100
<sup>108</sup> Rh	16.8±0.5	16.8±0.5	16.8±0.5	<sup>108</sup> Pd	β-	100	100	100
<sup>109</sup> Pd	13.7h±8.64s	13.7h±8.64s	13.7h±9s	<sup>109</sup> Ag	β-	99.95	99.91	99.95
				<sup>109m</sup> Ag	β-,n	0.085	0.023	0.05
<sup>109</sup> Nb	0.19±0.06	0.19±0.03	0.7	<sup>109</sup> Mo	β-	87.37	69	100
				<sup>109</sup> Mo	β-,n	12.65	31	0
<sup>108</sup> Nb	0.193±0.017	0.193±0.017	0.64	<sup>108</sup> Mo	β-	93.8	93.8	100
				<sup>107</sup> Mo	β-,n	6.2	6.2	100

Tableau 4.54 – Données de décroissance des isotopes contribuant à la formation de l'<sup>109</sup>Ag

Les valeurs de périodes fournies par JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.V0 sont identiques pour tous les isotopes. Notons que dans l'évaluation JENDL, la réaction (β-,n) conduisant à la formation du <sup>108</sup>Mo à partir du <sup>109</sup>Nb n'existe pas.

*Disparition du  $^{109}\text{Ag}$*

L'Argent 109 est un isotope stable. Il disparaît par réaction (n, $\gamma$ ) pour donner :



Les valeurs données concernant la disparition par capture de l' $^{109}\text{Ag}$  sont concordantes entre les différentes évaluations à 2200 m/s (source JANIS3.3) comme l'indique le Tableau 4.55.

Evaluation	$\sigma(n,\gamma)$ à 2200 m/s
JEF-2.2	90,747
JEFF-3.1.1	90,746
ENDF/B-VII.V0	91,122
JENDL-4	90,263

**Tableau 4.55 – Valeurs de section efficace (n, $\gamma$ ) du  $^{109}\text{Ag}$  à 2200 m/s**

L'expérience d'oscillation dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE d'un échantillon dopé en  $^{109}\text{Ag}$  a mis en évidence une sous-estimation de 2,6% de la valeur de sa section efficace de capture pour les assemblages REP-MOX. Pour une perturbation de + 2,6% de la section (n,  $\gamma$ ) de l'argent 109 conduisant à l'obtention de l'argent 110 (niveau fondamental), le résultat du calcul DARWIN2.3 indique une diminution de la concentration en  $^{109}\text{Ag}$  de -1%. Il apparaît donc que cette voie de disparition ne peut pas être considérée comme totalement négligeable pour le calcul du bilan matière de l'argent 109.

*Conclusion*

Suite à l'étude menée, les conclusions suivantes peuvent être tirées :

- La source d'incertitude principale impactant le calcul du bilan matière de l'argent 109 est issue des incertitudes associées aux rendements de fission cumulés des têtes de chaîne contribuant pour plus de 70% à sa formation. Les évaluations de JEFF-3.1.1 sont entachées d'incertitudes parfois élevées (jusqu'à 31%), qui ne couvrent pas toujours les écarts importants observés avec les autres évaluations (jusqu'à 60%).
- Les données relatives à la décroissance des isotopes amont ont un impact négligeable sur le calcul de la concentration en  $^{109}\text{Ag}$ .
- Suite à une perturbation de + 2,6% de la section (n,  $\gamma$ ) de l'argent 109 conduisant à la formation de l'argent 110 (niveau fondamental), une diminution de la concentration en  $^{109}\text{Ag}$  de -1% est observée.

L'amélioration de la précision des valeurs de rendements de fission des deux isotopes têtes de chaîne concernés, ruthénium 109 et technétium 109, apparaît comme nécessaire pour obtenir une amélioration de la précision du calcul du bilan matière de l'argent 109 avec le formulaire DARWIN2.3, estimée à 20% dans les combustibles MOX.

**$^{99}\text{Tc}$**

*Formation du  $^{99}\text{Tc}$*

Les isotopes  $^{99}\text{Zr}$ ,  $^{99}\text{Y}$  et  $^{99}\text{Nb}$  contribuent à 75% de la formation du  $^{99}\text{Tc}$  comme le montre le Tableau 4.56.

Isotope tête de chaîne	Contribution totale à la formation du $^{99}\text{Tc}$ (%)
$^{99}\text{Zr}$	45,4
$^{99}\text{Y}$	24
$^{99}\text{Nb}$	6,3

**Tableau 4.56 – Synthèse des voies de formation du Technétium 99**

Les trois voies principales de formation détaillées du  $^{99}\text{Tc}$  fournies par le module INVERSION du formulaire DARWIN2.3 sont les suivantes :

Contribution (%)	Chaîne de formation
25,3	$^{99}\text{Zr}(\beta^-) \rightarrow ^{99}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{99}\text{Mo}(\beta^-) \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}(\text{T.I}) \rightarrow ^{99}\text{Tc}$
14,4	$^{99}\text{Zr}(\beta^-) \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{99}\text{Mo}(\beta^-) \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}(\text{T.I}) \rightarrow ^{99}\text{Tc}$
13,4	$^{99}\text{Y}(\beta^-) \rightarrow ^{99}\text{Zr}(\beta^-) \rightarrow ^{99}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{99}\text{Mo}(\beta^-) \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}(\text{T.I}) \rightarrow ^{99}\text{Tc}$

**Tableau 4.57 – Détail des voies de formation du  $^{99}\text{Tc}$** 

Le Tableau 4.58 indique les répartitions des fissions conduisant à la formation des trois principales têtes de chaîne identifiées, en fonction des isotopes fissiles.

	$^{99}\text{Zr}$	$^{99}\text{Y}$	$^{99}\text{Nb}$
$^{239}\text{Pu}$	67,986	42,644	83,169
$^{241}\text{Pu}$	25,170	37,666	13,752
$^{238}\text{U}$	3,193	16,298	0,374
$^{235}\text{U}$	2,017	2,795	0,821

**Tableau 4.58 – Analyse des voies de formation du  $^{99}\text{Tc}$  : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les deux principales têtes de chaîne**

On y constate que le  $^{239}\text{Pu}$  est à l'origine de 68% de la formation du  $^{99}\text{Zr}$ , que le  $^{99}\text{Y}$  est formé pour moitié par fission du  $^{239}\text{Pu}$  et pour l'autre moitié par fission du  $^{241}\text{Pu}$  et que le  $^{239}\text{Pu}$  est le responsable majoritaire de celle du  $^{99}\text{Nb}$ .

#### *Formation du $^{99}\text{Tc}$*

Une étude individuelle est réalisée pour chacun des trois isotopes têtes de chaîne principaux concernant les rendements de fission cumulés des trois principales têtes de chaîne. Les rendements présentés dans les tableaux sont les rendements cumulés dans le domaine thermique. Les données relatives au zirconium 99, principale tête de chaîne et à l'origine de 45% de la formation du technétium 99, sont regroupées dans le Tableau 4.59 et les écarts entre les différentes évaluations dans le Tableau 4.60. Ces données sont renseignées pour la fission du plutonium 239 et du plutonium 241, responsables de 93% de sa formation.

<sup>99</sup> Zr		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
<sup>239</sup> Pu	RF Domaine thermique	5.35E-02	5.32E-02	5.22E-02	5.24E-02
	$\sigma$	4.82E-03	9.86E-04	1.017E-02	1.017E-02
	Incertitude relative	9 %	2 %	32 %	32 %
<sup>241</sup> Pu	RF Domaine thermique	5.38E-02	5.33E-02	5.72E-02	5.76E-02
	$\sigma$	8.76E-03	2.38E-03	9.15E-03	9.16E-03
	Incertitude relative	16 %	45 %	16 %	16 %

Tableau 4.59 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du <sup>99</sup>Zr

On note le très bon degré de précision de l'évaluation JEFF-3.1.1 concernant le rendement de fission thermique du <sup>239</sup>Pu responsable de la formation de cet isotope.

<sup>99</sup> Zr	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1	-2 %	7 %
Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1	-2 %	8 %
Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1	1 %	1 %

Tableau 4.60 – Ecart entre les différentes évaluations considérées

Concernant la voie de formation principale (fission du <sup>239</sup>Pu), les valeurs fournies par les évaluations sont cohérentes à 2% près. La valeur du rendement cumulé donnée par JEFF-3.1.1 du <sup>241</sup>Pu est cependant inférieure aux valeurs fournies par ENDF/B-VII.V0 et JENDL 4. Pour une variation des valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 dans les limites des incertitudes relatives de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la production de <sup>99</sup>Tc ayant pour origine le <sup>99</sup>Zr est de 5%. Les données relatives à l'yttrium 99, principale tête de chaîne et à l'origine de 24% de la formation du technétium 99, sont regroupées dans le Tableau 4.61 et les écarts entre les différentes évaluations dans le Tableau 4.62. Ces données sont renseignées pour la fission du plutonium 239 et du plutonium 241, responsables de 80% de sa formation.

<sup>99</sup> Y		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
<sup>239</sup> Pu	RF Domaine thermique	1.34E-02	1.33E-02	1.48E-02	1.48E-02
	$\sigma$	3.62E-03	2.80E-02	1.63E-03	1.63E-03
	Incertitude relative	27 %	21 %	11 %	11 %
<sup>241</sup> Pu	RF Domaine thermique	2.79E-02	2.40E-02	2.41E-02	2.41E-02
	$\sigma$	8.35E-03	2.91E-03	5.55E-03	5.55E-03
	Incertitude relative	30 %	12 %	23 %	23 %

Tableau 4.61 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du <sup>99</sup>Y

<sup>99</sup> Y	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1	10 %	0 %
Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1	10 %	0 %
Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1	1 %	16 %

Tableau 4.62 – Ecart entre les différentes évaluations considérées

On constate que :



- les valeurs des rendements de fission du  $^{241}\text{Pu}$  sont identiques entre toutes les évaluations étudiées ;
- les écarts observés sur les valeurs des rendements de fission du  $^{239}\text{Pu}$  restent de l'ordre de grandeur des incertitudes associées.
- lors d'une variation des valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 de l'ordre de grandeur des incertitudes associées issues de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la formation du  $^{99}\text{Tc}$  issu du  $^{99}\text{Y}$  est de 5%.

Les données relatives au niobium 99 figurent dans le Tableau 4.63. 83% du  $^{99}\text{Nb}$  étant formé par fission du  $^{239}\text{Pu}$ , seules les données relatives à cet isotope y sont renseignées.

$^{99}\text{Nb}$		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
$^{239}\text{Pu}$	RF Domaine thermique	4.01E-02	4.09E-02	3.73E-02	4.21E-02
	$\sigma$	2.26E-03	1.55E-03	1.19E-03	1.43E-03
	Incertitude relative	6 %	21 %	32 %	29 %

Tableau 4.63 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du  $^{99}\text{Nb}$

Le Tableau 4.64 présente les écarts entre l'évaluation JEFF-3.1.1 et les trois autres évaluations prises en considération.

$^{99}\text{Nb}$	$^{239}\text{Pu}$
Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1	-9 %
Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1	3 %
Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1	-2 %

Tableau 4.64 – Ecart entre les différentes évaluations considérées

On peut remarquer que :

- les valeurs des rendements de fission du  $^{239}\text{Pu}$  sont cohérentes à 9% au maximum, les incertitudes associées couvrant les écarts ;
- de par la faible contribution de la chaîne du  $^{99}\text{Nb}$  à la formation du  $^{99}\text{Tc}$  (moins de 10%) et la faible incertitude de la valeur proposée par JEFF-3.1.1, on peut rapidement conclure que la sensibilité du calcul du bilan matière du  $^{99}\text{Tc}$  associée à cette donnée sera négligeable.

Père	T1/2			Fils	Réaction	Branchement (%)		
	JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL <sup>2</sup>			JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL
<sup>99</sup> Y	1.477 ± 0.005	1.47 ± 0.007	1.47 ± 0.025	<sup>99</sup> Zr	β-	98.3	97.5	99.04
				<sup>99</sup> Zr	β-,n	0.17	0.25	0.96
<sup>99</sup> Zr	2.2 ± 0.1	2.1 ± 0.1	2.1 ± 0.1	<sup>99</sup> Nb	β-	63.2	100	64
				<sup>99m</sup> Nb	β-	36.8	/	36
<sup>99</sup> Nb	15 ± 0.2	15 ± 0.2	15 ± 0.2	<sup>99</sup> Mo	β-	100	100	100
<sup>99m</sup> Nb	2.6min ± 12	2.6min ± 12	2.6min ± 12	<sup>99</sup> Mo	β-	98	96	96.1
<sup>99</sup> Mo	2.7475j ± 36	2.7475j ± 36	2.7475j ± 36	<sup>99m</sup> Tc	β-	88	88	87
				<sup>99</sup> Tc	β-	12	12	13
<sup>99m</sup> Tc	6.01h ± 36	6.015 ± 32.4	6.0111h ± 40	<sup>99</sup> Tc	IT	99.996	99.996	99.9963
				<sup>99</sup> Ru	β-	0.0037	0.0037	0.0037

Tableau 4.65 – Données de décroissance des isotopes contribuant à la formation du <sup>99</sup>Tc

Le Tableau 4.65 fournit les données de décroissance issues de JEFF-3.1.1, ENDF/B-VII.V0 et JENDL pour les isotopes contribuant à 76% de la formation du <sup>99</sup>Tc.

On y constate que :

- les valeurs de périodes sont en accord pour tous les isotopes ;
- concernant les écarts observés :
  - <sup>99</sup>Y : écart absolu de 1,5% entre les valeurs de rapport de branchement de la réaction β- de l'<sup>99</sup>Y qui n'engendre pas de conséquence sur la concentration isotopique finale du <sup>99</sup>Tc car le <sup>99</sup>Y a une faible importance en temps que tête de chaîne ;
  - <sup>99</sup>Zr : écarts absolu entre JEFF-3.1.1 et JENDL de 0,8%.

#### Disparition du <sup>99</sup>Tc

Le <sup>99</sup>Tc disparaît par réaction (n,γ) selon <sup>99</sup>Tc → <sup>100</sup>Tc (100%) et par décroissance β- de période T1/2 = 2,1332.10<sup>5</sup> ans (valeur JEFF-3.1.1) pour donner le <sup>99</sup>Ru selon <sup>99</sup>Tc → <sup>99</sup>Ru (100%). Les valeurs de la période du <sup>99</sup>Tc présentes dans les évaluations JEFF-3.1.1, ENDF/B-VII.V0 et JENDL ne présentent pas d'écart significatif (≈ 1%). Les écarts observés sont de l'ordre des incertitudes associées. Au vu de la valeur de la période et de ces incertitudes, l'influence de cette constante sur le calcul du bilan matière du <sup>99</sup>Tc peut être négligée.

Père	T1/2			Fils	Réaction	Branchement (%)		
	JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL			JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL
<sup>99</sup> Tc	2.1332E+05 ans ± 7.999 E+03 ans	2.11099E+05 ans ± 1.2 E+03 ans	2.11047E+05 ans ± 1.267 E+03 ans	<sup>99</sup> Ru	β-	100	100	100

Figure 4.35 – Valeurs de la constante de décroissance du <sup>99</sup>Tc

Les valeurs fournies concernant la disparition par capture du  $^{99}\text{Tc}$  sont comparables pour les différentes évaluations à 2200 m/s. La valeur la plus faible, proposée par JEF-2.2, a été revue à la hausse dans JEFF-3.1.1 en accord avec les valeurs fournies par ENDF/B-VII.V0 et JENDL 4 comme le montre le Tableau 4.66.

Evaluation	$\sigma(n,\gamma)$ à 2200 m/s
JEF-2.2	19,120
JEFF-3.1.1	21,004
ENDF/B-VII.V0	22,805
JENDL-4	23,604

Tableau 4.66 – Valeurs de section efficace  $(n,\gamma)$  du  $^{99}\text{Tc}$  à 2200 m/s

Une expérience d'oscillation d'un échantillon dans le réacteur MINERVE a conduit à réévaluer les  $\sigma(n,\gamma)$  des produits de fission du CBU. L'écart C/E de la dernière interprétation a été obtenu avec le formulaire dédié PIMS. Le résultat met en évidence une surestimation de 7% de la section de capture du  $^{99}\text{Tc}$ . Un calcul réalisé avec la fonctionnalité « Perturbation » du formulaire DARWIN a permis d'évaluer à 0,7% la sensibilité de la concentration du technétium 99 à une variation de - 7% de sa section de capture ; le même calcul avec une variation arbitraire extrême de + 20% de cette section de capture conduit à une variation de seulement -2% de la concentration du technétium 99. Les résultats de ces deux calculs indiquent que l'incertitude associée à la valeur de la section efficace de capture sur le calcul du bilan matière du technétium 99 n'a qu'un très faible impact. L'impact de la modification de la valeur de cette section lors du passage de l'évaluation JEF2.2 à l'évaluation JEFF-3.1.1 est en particulier de -1%.

### Conclusion

A l'issue de cette étude, le calcul de la concentration du technétium 99 apparaît comme étant très peu sensible aux incertitudes associées aux voies de disparition, notamment à la précision de la valeur de sa section de capture. Ce sont les incertitudes associées aux valeurs des rendements de fission du zirconium 99 et de l'yttrium 99 qui constituent les principales sources d'incertitude dans le cadre du calcul du bilan matière du technétium 99 dans les combustibles MOx. L'incertitude cumulée due à ces données est de 10%.

### $^{101}\text{Ru}$

Les deux isotopes têtes de chaîne principaux sont le zirconium 101 et le niobium 101, responsables, comme l'illustre le Tableau 4.67 de 90% de la formation du  $^{101}\text{Ru}$ .

Isotope tête de chaîne	Contribution totale à la formation du $^{101}\text{Ru}$ (%)
$^{101}\text{Zr}$	38,9
$^{101}\text{Nb}$	32,5
$^{101}\text{Mo}$	4,5

Tableau 4.67 – Synthèse des voies de formation du Ruthénium 101

Les deux voies de formations principales détaillées du  $^{101}\text{Ru}$ , fournies par le module INVERSION du formulaire DARWIN2.3 sont présentées dans le Tableau 4.68.

Contribution (%)	Chaîne de formation
38,9	$^{101}\text{Zr}(\beta^-) \rightarrow ^{101}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{101}\text{Mo}(\beta^-) \rightarrow ^{101}\text{Tc}(\beta^-) \rightarrow ^{101}\text{Ru}$
34,5	$^{101}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{101}\text{Mo}(\beta^-) \rightarrow ^{101}\text{Tc}(\beta^-) \rightarrow ^{101}\text{Ru}$

**Tableau 4.68 – Détail des voies de formation du  $^{101}\text{Ru}$** 

Le Tableau 4.69 indique les répartitions des fissions conduisant à la formation des trois principales têtes de chaîne identifiées, en fonction des isotopes fissiles.

	$^{101}\text{Zr}$	$^{101}\text{Nb}$	$^{101}\text{Mo}$
$^{239}\text{Pu}$	49,1	72,1	86,7
$^{241}\text{Pu}$	37,2	22,2	10,9
$^{238}\text{U}$	10,3	2,3	0,2
$^{235}\text{U}$	1,9	1,2	0,6

**Tableau 4.69 – Analyse des voies de formation de formation du  $^{101}\text{Ru}$  : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les deux principales têtes de chaîne**

Ces trois isotopes sont essentiellement produits par fission du  $^{239}\text{Pu}$ , la formation du  $^{101}\text{Zr}$  étant toutefois due à 40% à la fission du  $^{241}\text{Pu}$ .

#### *Formation du $^{101}\text{Ru}$*

Analysons tout d'abord les rendements de fission cumulés des principales têtes de chaîne. Les données relatives au zirconium 101, principale tête de chaîne et à l'origine de 40% de la formation du ruthénium 101, sont regroupées dans le Tableau 4.70. Ces données sont renseignées pour la fission du plutonium 239 et du plutonium 241, à l'origine de 93% de sa formation.

$^{101}\text{Zr}$		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
$^{239}\text{Pu}$	RF Domaine thermique	2,52E-02	2,55E-02	2,33E-02	2,41E-02
	$\sigma$	5,38E-03	3,36E-02	7,45E-03	7,72E-03
	Incertitude relative	21 %	13 %	32 %	32 %
$^{241}\text{Pu}$	RF Domaine thermique	4,02E-02	3,96E-02	3,76E-02	4,0996E-02
	$\sigma$	9,64E-03	2,96E-03	1,29E-02	9,43E-03
	Incertitude relative	24 %	7 %	34 %	23 %

**Tableau 4.70 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du  $^{101}\text{Zr}$** 

$^{101}\text{Zr}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$
Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1	-9 %	-5 %
Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1	-5 %	4 %
Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1	-1 %	2 %

**Tableau 4.71 – Ecart entre les différentes évaluations considérées**

On constate d'après le Tableau 4.71 que :

- les valeurs des rendements de fission sont cohérentes entre les différentes évaluations à 9% près au maximum.
- les écarts observés entre évaluations sont couverts par les incertitudes associées aux données qui sont, hormis celles associées à JEFF-3.1.1, élevées (20 à 30%).

Pour une variation des valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 dans les limites des incertitudes relatives de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la production de  $^{101}\text{Ru}$  ayant pour origine le  $^{101}\text{Zr}$  est de 3%. Les données relatives au niobium 101, seconde tête de chaîne principale à l'origine de 32% de la formation du ruthénium 101, sont regroupées dans le Tableau 4.72. Ces données sont renseignées pour la fission du plutonium 239 et du plutonium 241, responsables de près de 95% de sa formation.

$^{101}\text{Nb}$		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
$^{239}\text{Pu}$	RF Domaine thermique	5,71E-02	5,64E-02	5,87E-02	5,87E-02
	$\sigma$	2,55E-03	2,79E-03	6,46E-03	6,46E-03
	Incertitude relative	4 %	5 %	11 %	11 %
$^{241}\text{Pu}$	RF Domaine thermique	5,89E-02	5,85E-02	6,12E-02	4,0996E-02
	$\sigma$	5,10E-03	3,397E-03	6,74E-03	6,74E-03
	Incertitude relative	9 %	6 %	11 %	11 %

Tableau 4.72 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du  $^{101}\text{Nb}$

$^{101}\text{Nb}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$
Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1	4 %	5 %
Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1	4 %	5 %
Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1	1 %	1 %

Tableau 4.73 – Ecart entre les différentes évaluations considérées

Les Tableaux 4.72 et 4.73 montrent que les faibles incertitudes associées aux valeurs des rendements de fission couvrent les écarts entre les valeurs données par les différentes évaluations. L'ensemble des données peut être considéré comme cohérent. Lors d'une variation des valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 de l'ordre de grandeur des incertitudes associées issues de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la formation du  $^{101}\text{Ru}$  issu du  $^{101}\text{Zr}$  est de 2%.

Les données de décroissance du  $^{101}\text{Ru}$  sont identiques pour l'ensemble des évaluations considérées comme le montre le Tableau 4.74. On remarque que toutes les périodes des isotopes alimentant le  $^{101}\text{Ru}$  sont inférieures à une heure. Tous ces corps sont à décroissance rapide. On peut alors considérer que ces périodes sont suffisamment faibles pour que leur influence sur le calcul du bilan matière du  $^{101}\text{Ru}$  soit négligeable.

Père	T1/2			Fils	Réaction	Branchement (%)		
	JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL <sup>s</sup>			JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL
<sup>101</sup> Zr	2.3±0.1	2.3±0.1	2.3±0.1	<sup>101</sup> Nb	β-	100	100	100
<sup>101</sup> Nb	7.1±0.3	7.1±0.3	7.1±0.3	<sup>101</sup> Mo	β-	100	100	100
<sup>101</sup> Mo	14.6min±1.8	14.6min±1.8	14.6min±1.8	<sup>101</sup> Tc	β-	100	100	100
<sup>101</sup> Tc	14.2min±6	14.2min±0.6	14.2min±6	<sup>101</sup> Ru	β-	100	100	100

Tableau 4.74 – Valeurs des données de décroissance des isotopes alimentant le <sup>101</sup>Ru*Disparition du <sup>101</sup>Ru*

Le <sup>101</sup>Ru disparaît uniquement par capture (n,γ) selon <sup>101</sup>Ru → <sup>102</sup>Ru (100%). Concernant la section efficace de capture, on remarque que la valeur de σ(n,γ) dans JEFF-3.1.1 est restée identique à celle fournie dans JEF-2.2 tandis qu'elle a été respectivement augmentée de 51% pour ENDF/B-VII.V0 par comparaison avec ENDF/B-6.8 et de 56% pour JENDL 4/ JENDL 3.3 (Tableau 4.75).

Evaluation	σ(n,γ) à 2200 m/s
JEF-2.2	3,41487
JEFF-3.1.1	3,41487
ENDF/B-VII.V0	5,22565
JENDL-4	5,23211

Tableau 4.75 – Valeurs de section efficace (n,γ) du <sup>101</sup>Ru à 2200 m/s

Les expériences d'oscillation dans le réacteur MINERVE n'ont pas permis de tirer une conclusion sur la section efficace σ(n,γ) du <sup>101</sup>Ru. La valeur de σ(n,γ) à 2200 m/s est faible donc le calcul du bilan matière du <sup>101</sup>Ru va être peu impacté par l'incertitude liée à cette donnée.

*Conclusion*

La principale source d'incertitude pour le calcul de la concentration du ruthénium 101 est constituée par les incertitudes sur les valeurs de rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 conduisant à la formation du zirconium 101 et du niobium 101. Bien que cela ne puisse servir à conclure sur leur pertinence, on remarque que les valeurs de ces rendements sont concordantes entre les différentes évaluations étudiées. L'incertitude du calcul du bilan matière du ruthénium 101 associée aux données nucléaires de JEFF-3.1.1 est estimée à 5%.

**<sup>95</sup>Mo***Formation du <sup>95</sup>Mo*

Les isotopes <sup>95</sup>Sr, <sup>95</sup>Y et <sup>95</sup>Rb contribuent à hauteur de 73% de la formation du <sup>95</sup>Mo comme le montre le Tableau 4.76.

Isotope tête de chaîne	Contribution totale à la formation du $^{95}\text{Mo}$ (%)
$^{95}\text{Sr}$	46,7
$^{95}\text{Y}$	19
$^{95}\text{Rb}$	7,6

Tableau 4.76 – Synthèse des voies de formation du Molybdène 95

Les trois principales voies de formation du  $^{95}\text{Mo}$  sont les suivantes :

Contribution (%)	Chaîne de formation
46,7	$^{95}\text{Sr}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Y}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Zr}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Mo}$
19,0	$^{95}\text{Y}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Zr}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Mo}$
7,6	$^{95}\text{Rb}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Sr}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Y}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Zr}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Nb}(\beta^-) \rightarrow ^{95}\text{Mo}$

Tableau 4.77 – Détail des voies de formation du  $^{95}\text{Mo}$ 

Le Tableau 4.78 indique les répartitions des fissions conduisant à la formation de ces trois principales têtes de chaîne identifiées, en fonction des isotopes fissiles.

	$^{95}\text{Sr}$	$^{95}\text{Y}$	$^{95}\text{Rb}$
$^{239}\text{Pu}$	60,7	77,4	31,9
$^{241}\text{Pu}$	27,6	17,5	31,8
$^{238}\text{U}$	7,4	1,4	32,4
$^{235}\text{U}$	2,9	1,7	2,5

Tableau 4.78 – Analyse des voies de formation de formation du  $^{95}\text{Mo}$  : répartition des fissions en fonction des différents isotopes fissiles pour les deux principales têtes de chaîne

Le strontium 95 est à l'origine de 47% de la formation de  $^{95}\text{Mo}$  et est issu à 88% des fissions de plutonium 239 et du plutonium 241. Le Tableau 4.79 présente les rendements de fission cumulés dans le domaine thermique de cet isotope.

$^{95}\text{Sr}$		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
$^{239}\text{Pu}$	RF Domaine thermique	3,27E-02	3,23E-02	3,01E-02	3,01E-02
	$\sigma$	4,29E-03	1,67E-03	9,64E-03	9,64E-03
	Incertitude relative	13 %	5 %	32 %	32 %
$^{241}\text{Pu}$	RF Domaine thermique	3,18E-02	3,18E-02	3,25E-02	3,25E-02
	$\sigma$	5,88E-03	1,38E-03	7,46E-03	7,46E-03
	Incertitude relative	19 %	4 %	23 %	23 %

Tableau 4.79 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du  $^{95}\text{Sr}$



<sup>95</sup> Sr	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
<b>Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1</b>	-7 %	2 %
<b>Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1</b>	-7 %	2 %
<b>Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1</b>	1 %	0 %

**Tableau 4.80 – Ecart entre les différentes évaluations considérées**

On constate d'après le Tableau 4.80 que les valeurs des rendements de fission sont cohérentes entre les différentes évaluations à 7% près maximum. Pour une variation des valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 dans les limites des incertitudes relatives de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la production de <sup>95</sup>Mo ayant pour origine le <sup>95</sup>Sr est de 2%. L'yttrium 95 est à l'origine de la formation de 19% du <sup>95</sup>Mo. Le Tableau 4.81 présente les valeurs des rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du plutonium 239 et du plutonium 241 responsables de 95% de sa formation.

<sup>95</sup> Y		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
<sup>239</sup> Pu	<b>RF Domaine thermique</b>	4,81E-02	4,82E-02	4,69E-02	4,69E-02
	$\sigma$	1,29E-03	9,81E-04	1,08E-02	1,08E-02
	<b>Incrtitude relative</b>	3 %	2 %	23 %	23 %
<sup>241</sup> Pu	<b>RF Domaine thermique</b>	3,96E-02	3,89E-02	3,91E-02	3,91E-02
	$\sigma$	3,01E-03	1,48E-03	2,35E-03	2,35E-03
	<b>Incrtitude relative</b>	8 %	4 %	6 %	6 %

**Tableau 4.81 – Rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du <sup>95</sup>Y**

On remarque le degré de précision élevé de l'évaluation JEFF-3.1.1 concernant le rendement de fission thermique du <sup>239</sup>Pu responsable de la formation de cet isotope.

<sup>95</sup> Y	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu
<b>Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1</b>	-3 %	1 %
<b>Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1</b>	-3 %	1 %
<b>Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1</b>	0 %	2 %

**Tableau 4.82 – Ecart entre les différentes évaluations considérées**

Les quatre évaluations sont en accord concernant les valeurs des rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du plutonium 239 et du plutonium 241 responsables de la formation du <sup>95</sup>Y comme l'indiquent les Tableaux 4.81 et 4.82. En faisant varier les valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 dans les limites des incertitudes relatives de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la formation du <sup>95</sup>Mo due au <sup>95</sup>Y est nul. Le <sup>95</sup>Rb est à l'origine de la formation de 8% du <sup>95</sup>Mo. Le Tableau 4.83 présente les valeurs des rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du plutonium 239 et du plutonium 241 ainsi que de l'uranium 238 dans le domaine rapide, responsables de 96% de sa formation.

<sup>95</sup> Rb		JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V0	JENDL-4
<sup>239</sup> Pu	RF Domaine thermique	2,42E-03	2,61E-03	4,33E-03	4,34E-03
	$\sigma$	2,13E-04	8,26E-04	6,93E-04	6,93E-04
	Incertitude relative	9 %	32 %	16 %	16 %
<sup>241</sup> Pu	RF Domaine thermique	4,94E-03	5,14E-03	5,50E-03	5,49E-03
	$\sigma$	2,76E-03	1,36E-03	2,47E-03	2,47E-03
	Incertitude relative	56 %	27 %	45 %	45 %
<sup>238</sup> U	RF Domaine rapide	1,74E-02 (400 keV)	2,20E-02	1,71E-02 (500 keV)	1,71E-02
	$\sigma$	5,02E-03	2,73E-03	5,48E-03	5,48E-03
	Incertitude relative	30 %	12 %	32 %	32 %

Tableau 4.83 – Rendements de fission cumulés dans les domaines thermique et rapide du <sup>95</sup>Rb

<sup>95</sup> Rb	<sup>239</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu	<sup>238</sup> U
Ecart ENDF/B-VII.V0 / JEFF-3.1.1	66 %	7 %	-22 %
Ecart JENDL 4 / JEFF-3.1.1	66 %	7 %	-22 %
Ecart JEF-2.2 / JEFF-3.1.1	-7 %	-4 %	-21 %

Tableau 4.84 – Ecart entre les différentes évaluations considérées

On constate dans le Tableau 4.84 une importante disparité entre les valeurs fournies par ENDF/B-VII et JENDL-4 concernant les rendements de fission cumulés du plutonium 239 amenant à la création de <sup>95</sup>Rb. Pour une variation des valeurs des rendements de fission du plutonium 239 et du plutonium 241 dans les limites des incertitudes relatives de JEFF-3.1.1, l'impact cumulé sur la production de <sup>95</sup>Mo ayant pour origine le <sup>95</sup>Rb est de 2%. Cet impact serait identique en considérant les valeurs d'incertitudes liées aux rendements présentes dans l'évaluation ENDF/B-VII.V0. Le Tableau 4.85 présente les données de décroissance issues de JEFF-3.1.1, ENDF/B-VII.V0 et JENDL pour les isotopes contribuant à 73% de la formation du <sup>95</sup>Mo. Les valeurs des périodes sont en accord pour tous les isotopes ainsi que les valeurs des différents rapports de branchement entre les trois évaluations.

Père	T1/2			Fils	Réaction	Branchement (%)		
	JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL			JEFF-3.1.1	ENDF BVII V0	JENDL
<sup>95</sup> Sr	23.9± 0.1	23.9± 0.1	23.9± 0.1	<sup>95</sup> Y	β-	100	100	100
<sup>95</sup> Y	10.3min± 6s	10.3min± 6s	10.3min± 6s	<sup>95</sup> Zr	β-	100	100	100
<sup>95</sup> Nb	34.9j± 9min	34.9j± 9min	35j± 10min	<sup>95</sup> Mo	β-	100	100	100
<sup>95</sup> Rb	0.38± 0.03	0.38± 0.008	0.38	<sup>95</sup> Sr	β-	91.4	91.2	91.4
<sup>95m</sup> Nb	3.6j± 48min	3.6j± 43min	3.6j± 50min	<sup>95</sup> Nb	IT	94.4	94.4	94.4
				<sup>95</sup> Mo	β-	5.6	5.6	5.6
<sup>95</sup> Kr	0.11± 0.03	0.11± 0.03	0.78	<sup>95</sup> Rb	β-	97.1	97.1	88
<sup>95</sup> Zr	64j±9min	64j±9min	64j±1h	<sup>95</sup> Nb	98.9	98.9	98.9	99.1
				<sup>95m</sup> Nb	1.1	1.1	1.1	0.9
<sup>95</sup> Rb	0.20± 0.03	0.20± 0.03	0.20± 0.03	<sup>95</sup> Sr	β- <sub>0.0</sub>	13	13	14.2
<sup>96m</sup> Rb	0.2	/	/	<sup>96</sup> Rb	IT	50	/	/

Tableau 4.85 – Valeurs des données de décroissance des isotopes alimentant le <sup>95</sup>Mo*Disparition du <sup>95</sup>Mo*

Le Molybdène 95 est un isotope stable disparaissant sous irradiation uniquement par capture radiative pour donner <sup>95</sup>Mo → <sup>96</sup>Mo (100%). Les valeurs données concernant la disparition par capture du <sup>95</sup>Mo sont concordantes entre les différentes évaluations à 2200 m/s (source JANIS3.4) comme l'indique le Tableau 4.86.

Evaluation	σ(n,γ) à 2200 m/s
JEF-2.2	13,999
JEFF-3.1.1	13,57
ENDF/B-VII.V0	13,58
JENDL-4	13,60

Tableau 4.86 – Valeurs de section efficace (n,γ) du <sup>95</sup>Mo à 2200 m/s*Conclusion*

Les incertitudes des rendements de fission dans JEFF-3.1.1 associés au strontium 95 et au rubidium 95, constituent la principale source d'incertitude pour le calcul de la concentration de celui-ci. Leur impact respectif est de 2%. L'incertitude résultant de la précision associée aux rendements des trois isotopes têtes de chaîne principaux sur le calcul de la concentration du molybdène 95 dans les combustibles MOx est estimée à 4%.

### 4.3.3 Détermination des facteurs correctifs sur le bilan-matière associés

Afin de déterminer les facteurs correctifs associés au bilan-matière des produits de fission métalliques, nous allons tout d'abord nous assurer du caractère enveloppe des valeurs d'incertitudes fournies par l'étude des données nucléaires précédemment exposée par rapport aux écarts calcul-expérience issus de la dissolution ATALANTE et de la qualification du formulaire DARWIN-2.3 présentés dans le Tableau 4.87. Ces écarts calcul-expérience sont relatifs à un crayon de la zone centrale (crayon E05) irradié dans le réacteur Dampierre-2 à 40GWj/t.

Isotope	C/E qualification DARWIN-2.3 + $1,65 \times \sigma$ (%)	$1,65 \times \sigma$ Données nucléaires (%)
<sup>95</sup> Mo	9,3	6,6
<sup>99</sup> Tc	4,2	16,5
<sup>101</sup> Ru	7,1	8,3
<sup>103</sup> Rh	17,9	16,5
<sup>109</sup> Ag	12,3	21,5

**Tableau 4.87 – Valeurs des facteurs correctifs relatifs au bilan-matière des produits de fission métalliques**

Les valeurs d'incertitudes relatives à la propagation des incertitudes sur les données nucléaires sont bien enveloppes par rapport aux écarts calcul-expérience de la qualification DARWIN-2.3 pour les isotopes <sup>99</sup>Tc, <sup>101</sup>Ru et <sup>109</sup>Ag. Les facteurs correctifs applicables à ces cinq produits de fission métalliques sont alors calculés suivant la formule  $FC = 1/(1 + \Delta)$ . Ainsi, les valeurs du Tableau 4.88 seront considérées afin de garantir le conservatisme de leur bilan-matière :

Isotope	Facteur Correctif Isotopique
<sup>95</sup> Mo	0,92
<sup>99</sup> Tc	0,86
<sup>101</sup> Ru	0,92
<sup>103</sup> Rh	0,85
<sup>109</sup> Ag	0,82

**Tableau 4.88 – Valeurs des facteurs correctifs relatifs au bilan-matière des produits de fission métalliques**

Une analyse a été effectuée concernant les écarts sur le bilan-matière entre les résultats fournis par DARWIN-2.3 et le code de référence industriel CESAR-5.3, utilisé par AREVA-NC à l'usine de retraitement de La Hague pour les isotopes d'intérêt du CBU REP-MOX. Les écarts CESAR-5.3/DARWIN-2.3 présentés dans le Tableau 4.89 ont été évalués pour chacun de ces isotopes pour le calcul du bilan-matière d'un combustible REP-MOX de teneur initiale en plutonium et <sup>241</sup>Am de 5%, irradié jusqu'à 60 GWj/t sans refroidissement ni prise en compte d'inter-cycles [BM-16]. Les écarts non conservatifs sont indiqués en gras.

		(CESAR-DARWIN)/DARWIN (%)
<b>Actinides</b>	<sup>234</sup> U	-0,4
	<sup>235</sup> U	<b>-1,0</b>
	<sup>236</sup> U	<b>0,1</b>
	<sup>238</sup> Pu	2,8
	<sup>239</sup> Pu	<b>-0,2</b>
	<sup>240</sup> Pu	-0,4
	<sup>241</sup> Pu	<b>-0,3</b>
	<sup>242</sup> Pu	<b>0,3</b>
	<sup>241</sup> Am	-0,9
	<sup>242m</sup> Am	<b>0,4</b>
	<sup>243</sup> Am	<b>0,6</b>
	<sup>237</sup> Np	<b>0,4</b>
	<sup>243</sup> Cm	0,3
	<sup>244</sup> Cm	<b>3,8</b>
	<sup>245</sup> Cm	4,2
<b>Produits de fission</b>	<sup>95</sup> Mo	<b>0,5</b>
	<sup>99</sup> Tc	<b>0,5</b>
	<sup>101</sup> Ru	-0,1
	<sup>103</sup> Rh	<b>0,3</b>
	<sup>109</sup> Ag	<b>0,5</b>
	<sup>133</sup> Cs	<b>0,4</b>
	<sup>143</sup> Nd	<b>0,3</b>
	<sup>145</sup> Nd	<b>0,4</b>
	<sup>147</sup> Sm	-0,1
	<sup>149</sup> Sm	<b>0,2</b>
	<sup>150</sup> Sm	<b>0,6</b>
	<sup>151</sup> Sm	<b>0,4</b>
	<sup>152</sup> Sm	-0,2
	<sup>153</sup> Eu	<b>0,1</b>
	<sup>155</sup> Gd	<b>0,1</b>

**Tableau 4.89 – Ecartes CESAR-5.3/DARWIN-2.3 pour un combustible REP-MOx (teneur Pu+<sup>241</sup>Am 5%), 60 GWj/t**

Les écarts les plus significatifs entre CESAR-5.3 et DARWIN-2.3 proviennent du <sup>244</sup>Cm (surestimation de +4,2 %), du <sup>245</sup>Cm (surestimation de +3,8 %) et du <sup>238</sup>Pu (surestimation de +2,8 %).

Les résultats de calcul CESAR-5.3 obtenus pour l'<sup>235</sup>U, le <sup>239</sup>Pu, le <sup>241</sup>Pu et le <sup>242m</sup>Am sont légèrement sous-estimés par rapport à ceux donnés en référence par DARWIN-2.3 (-0,6 %), ce qui n'est pas conservatif du point de vue de la criticité, de même que la légère surestimation (1 %) de certains absorbants : <sup>236</sup>U, <sup>242</sup>Pu, <sup>237</sup>Np, <sup>243</sup>Am, <sup>244</sup>Cm. Ces écarts peuvent être intégrés aux facteurs correctifs appliqués aux concentrations en amont du calcul de criticité. Le Tableau 4.90 présente l'impact de leur prise en compte sur les facteurs correctifs isotopiques. Les facteurs correctifs intégrant les écarts CESAR-5.3/DARWIN-2.3 sont déterminés sur la base de la somme des écarts [(C/E)-1 ± 1,65 σ] fournis par les résultats de la qualification DARWIN-2.3 avec les écarts [(CESAR-DARWIN)/DARWIN] présentés dans le Tableau 4.90.

Isotope	FC DARWIN-2.3 (%)	(CESAR-DARWIN)/DARWIN (%)	Facteur isotopique retenu
<sup>235</sup> U	1,01	1,0	1,0
<sup>236</sup> U	0,99	1,0	0,99
<sup>239</sup> Pu		X	
<sup>241</sup> Pu		X	
<sup>242</sup> Pu	0,97	1,0	0,97
<sup>242m</sup> Am	1,0	1,0	1,0
<sup>243</sup> Am	0,93	0,99	0,93
<sup>237</sup> Np	0,93	1,0	0,93
<sup>244</sup> Cm	1,0	0,96	0,96
<sup>95</sup> Mo	0,94	1,0	0,94
<sup>99</sup> Tc	0,86	1,0	0,86
<sup>103</sup> Rh	0,86	1,0	0,86
<sup>109</sup> Ag	0,82	1,0	0,82
<sup>133</sup> Cs	0,97	1,0	0,97
<sup>143</sup> Nd	0,98	1,0	0,98
<sup>145</sup> Nd	0,98	1,0	0,98
<sup>149</sup> Sm	0,96	1,0	0,96
<sup>150</sup> Sm	1,0	0,99	0,99
<sup>151</sup> Sm	1,0	1,0	1,0
<sup>153</sup> Eu	0,96	1,0	0,96
<sup>155</sup> Gd	0,96	1,0	0,96

Tableau 4.90 – Facteurs correctifs isotopiques intégrant les écarts CESAR-5.3/DARWIN-2.3

On remarque que, hormis pour le <sup>244</sup>Cm et le <sup>150</sup>Sm, les facteurs correctifs isotopiques provenant de la qualification du formulaire DARWIN-2.3/JEFF-3.1.1/SHEM sont enveloppes. Un calcul de criticité effectué sur la configuration piscine contenant des assemblages MOx irradiés à 45 GWj/t sans refroidissement ne montre aucun impact sur le  $k_{eff}$  lors de la prise en compte d'un facteur correctif de 0,96 au lieu de 1,0 de sur la concentration du <sup>244</sup>Cm et de 0,99 au lieu de 1,0 sur celle du <sup>150</sup>Sm. On peut alors conclure en considérant que, du point de vue de la criticité, l'impact des écarts CESAR-5.3/DARWIN-2.3 sur le calcul du bilan-matière des isotopes du CBU REP-MOx est négligeable.

## 4.4 Conclusion

Les Facteurs Correctifs Isotopiques à appliquer au bilan matière en amont du calcul de criticité sont définis dans le but de garantir le conservatisme de celui-ci en s'appuyant sur les dossiers de qualification du produit DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4. Ceux-ci ont montré que les concentrations des principaux isotopes du CBU REP-MOx étaient bien calculées avec JEFF-3.1.1.

Ce chapitre fournit les éléments relatifs au produit DARWIN2.3/SHEM/CEA2005V4 en vue de la définition des Facteurs Correctifs Isotopiques pour les combustibles REP-MOx. Les biais pénalisants  $[C/E-1] \pm 1,65\sigma$  (%) provenant de la qualification DARWIN2.3 sur les combustibles irradiés REP-MOx (Saint-Laurent B1 et Dampierre 2 HTC) et les facteurs correctifs à appliquer en conséquence aux concentrations isotopiques des isotopes du CBU sont fournis dans le Tableau 4.91.

	JEFF-3.1.1
<b>Actinide</b>	<b>Facteur correctif isotopique</b>
<sup>234</sup> U	0,98
<sup>235</sup> U	1,01
<sup>236</sup> U	0,99
<sup>238</sup> U	1,0
<sup>238</sup> Pu	1,0
<sup>239</sup> Pu	
<sup>240</sup> Pu	0,95
<sup>241</sup> Pu	
<sup>242</sup> Pu	0,97
<sup>237</sup> Np	0,93
<sup>241</sup> Am	0,95
<sup>242m</sup> Am	1,06
<sup>243</sup> Am	0,93
<sup>243</sup> Cm	1,22
<sup>244</sup> Cm	1,0
<sup>245</sup> Cm	1,14
<b>Produit de fission</b>	<b>Facteur correctif isotopique</b>
<sup>95</sup> Mo	0,94
<sup>99</sup> Tc	0,86
<sup>101</sup> Ru	0,92
<sup>103</sup> Rh	0,86
<sup>109</sup> Ag	0,82
<sup>133</sup> Cs	0,97
<sup>143</sup> Nd	0,98
<sup>145</sup> Nd	0,98
<sup>147</sup> Sm	1,0
<sup>149</sup> Sm	0,96
<sup>150</sup> Sm	1,0
<sup>151</sup> Sm	1,0
<sup>152</sup> Sm	1,0
<sup>153</sup> Eu	0,96
<sup>155</sup> Gd	1,0

Tableau 4.91 – Facteurs correctifs isotopiques

Les résultats obtenus avec le schéma de calcul CYCLE2008 ( $P_{ij}$ -SHEM) et les données nucléaires issues de JEFF-3.1.1 montrent une réduction des biais pénalisés par rapport à ceux obtenus avec la précédente évaluation JEF-2.2 (en valeur absolue) pour les isotopes suivants : <sup>234</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>236</sup>U, <sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, <sup>241</sup>Am, <sup>242m</sup>Am, <sup>243</sup>Am, <sup>243</sup>Cm, <sup>244</sup>Cm, <sup>245</sup>Cm, <sup>143</sup>Nd, <sup>145</sup>Nd, <sup>147</sup>Sm, <sup>149</sup>Sm, <sup>150</sup>Sm, <sup>151</sup>Sm, <sup>152</sup>Sm, <sup>155</sup>Gd, <sup>153</sup>Eu, <sup>95</sup>Mo, <sup>99</sup>Tc, <sup>101</sup>Ru, <sup>103</sup>Rh, <sup>109</sup>Ag qui traduit la grande fiabilité du produit DARWIN-2.3/SHEM/CEA2005V4 pour la prédiction du bilan-matière des isotopes du CBU REP-MOx. Cette étude constitue l'une des étapes de la définition d'une méthodologie adaptée à la prise en compte du CBU REP-MOx dans les études de criticité.

#### Produits de fission métalliques

Concernant les produits de fission métalliques, en raison de la disponibilité d'une seule analyse isotopique fiable par isotope, aucune tendance n'a pu être dégagée en fonction du burn-up comme pour les autres isotopes. Les voies de formation et de disparition de ces cinq produits de fission ont donc été étudiées



dans le but d'identifier les données nucléaires de base influant sur le calcul de leur bilan matière. Les valeurs de ces données présentes dans les évaluations américaine ENDF/B-VII.V0 et japonaise JENDL4 ont fait l'objet d'une comparaison avec les valeurs issues de JEFF-3.1.1 utilisées par le formulaire DARWIN2.3. Ainsi, les principales sources d'incertitudes ont été mises en évidence et la sensibilité relative du calcul des concentrations de ces PF a été quantifiée. Les quatre PF étudiés sont essentiellement issus de la décroissance  $\beta^-$  d'isotopes à vie courte en amont, de multiples têtes de chaîne pouvant être identifiées. Ils ne sont que très faiblement produits par fission directe et, du fait de leur stabilité, disparaissent principalement par capture radiative. Les principales sources d'incertitudes identifiées pour le calcul de bilan-matière de ces isotopes sont les valeurs de rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du plutonium 239 et du plutonium 241. Les incertitudes éventuelles sur les données de décroissance des isotopes amont et sur les valeurs de sections efficaces de capture ont un faible impact. L'incertitude relative calcul de bilan-matière dans les combustibles REP-MOx avec le formulaire DARWIN 2.3 est de :

- 10 % pour le rhodium 103 ;
- 10 % pour le technétium 99 ;
- 5 % pour le ruthénium 101 ;
- 13 % pour l'argent 109 ;
- 4 % pour le molybdène 95.

## Conservatisme du Bilan Matière en évolution : bibliographie

- [BM-1] C. RIFFARD, Communication CEA, 2008
- [BM-2] C. RIFFARD, A. SANTAMARINA, J.F THRO, *Correction factors applied to isotopic concentrations in Burnup Credit implementation of PWR LEU applications with the recent JEFF 3.1.1 / SHEM Library*, Proc of Int Conf ICNC, Edinburgh, Scotland, 19-23 September, 2011
- [BM-3] A. CHAMBON, A. SANTAMARINA, C. RIFFARD, F. LAVAUD, D. LECARPENTIER, *Needs of reliable nuclear data and covariance matrices for Burnup Credit in JEFF-3 library*, Proc of Int Workshop WONDER 2012, Aix-en-Provence, France, September 25-28, 2012
- [BM-4] L. SAN FELICE ET AL., *Experimental validation of the DARWIN-2.3 package for fuel cycle applications*, Proc. Of Int. Conf PHYSOR, Knoxville, USA, April 15-20, 2012
- [BM-5] R.ESCHBACH ET AL., Communication CEA, 2009
- [BM-6] L. LAFOND, *Qualification du formulaire du cycle du combustible DARWIN2.3 pour le calcul du bilan matière des combustibles REP MOx à haut taux de combustion*, Rapport de stage, CNAM, Centre de Bagnols-sur-Cèze, 2010
- [BM-7] P. MARIMBEAU, Communication CEA, 2006
- [BM-8] D. BERNARD, A. SANTAMARINA, Communication CEA, 2004
- [BM-9] A. TZILANIZARA ET AL., *DARWIN : an evolution code system for a large range of applications*, Proc of ICRS-9, Tsukuba, Japan, October, 1999
- [BM-10] J. F. VIDAL ET AL., *New Modelling of LWR Assemblies using the APOLLO2 Code Package* Proc of the Int. Conf. on Math. and Comp. MC2007, Monterey, USA, April 15-17, 2007.
- [BM-11] N. HFAIEDH, *Nouvelle méthodologie de calcul de l'absorption résonnante*, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 2006
- [BM-12] B. ROQUE ET AL., *Experimental validation of the code system « DARWIN » for spent fuel isotopic predictions in fuel cycle applications*, Proc of Int Conf PHYSOR, Seoul, Korea, October 7-10, 2002
- [BM-13] C. STRUZI, Y. GUERIN, *The METEOR/TRANSURANUS fuel performance code*, Proc of Int Conf FUMEX - 96, Bombay, India, April 1-5, 1996
- [BM-14] N. SOPPERA & AL., *Recent upgrades to the nuclear data tool JANIS*, Proc of Int Conf ND, Jeju Island, Korea, April 26- 30, 2010
- [BM-15] C. RIFFARD, B. ROQUE, Communication CEA, 2005
- [BM-16] J.M VIDAL, Communication CEA, 2010

## Chapitre 5

# MISE EN OEUVRE DU CBU DANS LES APPLICATIONS REP-MOX

*L'évaluation des biais liés à l'antiréactivité des isotopes du CBU REP-MOX et en particulier des 15 produits de fission considérés est le second point clé de la définition d'une méthodologie CBU applicable à ces combustibles. Leur estimation, ainsi que celle des pénalités associées qui peuvent être directement appliquées au  $k_{eff}$  de la configuration étudiée, repose sur la qualification de leur effet en réactivité. Après un rappel méthodologique et la présentation de la Méthode des Expériences Intégrales mettant en œuvre la théorie de la représentativité implantée dans l'outil RIB (Représentativité, Incertitude, Biais), les programmes expérimentaux retenus pour cette qualification seront présentés respectivement pour les actinides et les produits de fission. La définition d'un schéma de calcul « optimisé » d'interprétation des expériences d'oscillations de produits de fission séparés dans le réseau RIMOX de MINERVE (représentatif d'un réseau REP-MOX) pour les applications CBU, pour lesquelles des approximations peuvent être faites, fera l'objet d'une étude détaillée. Les tendances observées quant aux données nucléaires des isotopes oscillés seront identifiées. Enfin les travaux menés à l'aide du code de Re-estimation des Données Nucléaires RDN afin de déterminer des matrices de covariances réalistes associées à l'évaluation JEFF-3.1.1 pour les deux principaux produits de fission du CBU REP-MOX,  $^{149}\text{Sm}$  et  $^{103}\text{Rh}$ , seront discutés et utilisés dans le cadre d'une première étude de représentativité de leur empoisonnement dans le cas d'un assemblage grâce aux développements spécifiques réalisés dans RIB. La matrice de covariance du  $^{155}\text{Gd}$  associée à l'évaluation JEFF-3.1.1, déjà disponible dans la littérature, permettra suivant la même méthodologie basée sur RIB d'évaluer le facteur de pénalité à associer à l'antiréactivité de cet isotope.*

### 5.1 Rappel méthodologique

Comme nous l'avons évoqué dans le Chapitre 1, la Règle Fondamentale de Sûreté n° I.3.c applicable à la conception, au dimensionnement et à l'exploitation d'une installation mettant en œuvre des matières fissiles ainsi qu'à la formation du personnel de cette installation impose que *le dimensionnement, les quantités de matières fissiles et celles des poisons neutroniques soient définis de telle façon que le facteur de multiplication effectif de l'installation soit strictement inférieur à 1 avec une marge de sûreté suffisante.*

La Figure 5.1 illustre ce concept de marge de sûreté.

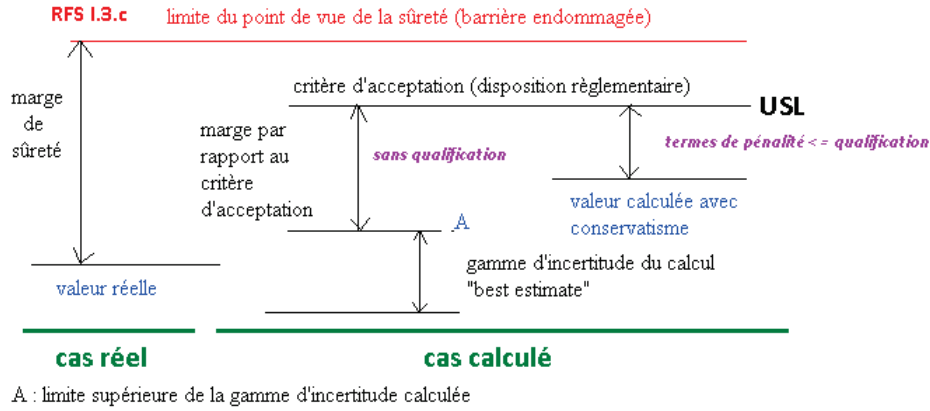


Figure 5.1 – Concept de marge de sûreté

Pour chaque étude de sûreté-criticité, un critère admissible peut être défini, en dessous duquel, la sûreté de l'installation vis-à-vis du risque de criticité est garantie. Ce critère porte le nom de Upper Safety Limit (USL) (Figure 5.1). Les valeurs généralement considérées pour l'USL, tenant compte des incertitudes de calculs et des biais, sont de 0,95 dans les conditions normales d'exploitation et de 0,97 en situation accidentelle. En fonction du degré de confiance accordé aux outils de calcul utilisés pour réaliser l'étude et de leur degré de **qualification** par comparaison à des résultats expérimentaux obtenus sur des configurations représentatives, ces valeurs peuvent être modulées. Le critère d'acceptation visant le  $k_{eff}$  d'une application industrielle est défini par la relation suivante [APPLI-1] :

$$k_{eff} + \Delta k_R \leq USL - (\Delta k_N + \Delta k_B^\Sigma) \quad (5.1)$$

Les termes de pénalité s'appliquant au  $k_{eff}$  peuvent être classés en deux catégories :

- les biais associés au bilan matière des isotopes considérés représentés par le terme  $\Delta k_N$  ;
- les biais associés à l'effet en réactivité de ces mêmes isotopes représentés par le terme  $\Delta k_B^\Sigma$ .

Le terme  $\Delta k_R$  prends en compte les biais liés à la convergence numérique du calcul du  $k_{eff}$ . Les biais relatifs au bilan-matière sont pris en compte par l'intermédiaire des facteurs correctifs isotopiques déterminés au Chapitre 4 sur la base de la qualification du formulaire d'évolution DARWIN-2.3. Concernant à présent les biais associés à l'effet en réactivité des isotopes retenus dans le cadre des études CBU, une sélection pertinente d'expériences (expériences critiques, expériences d'oscillation d'isotopes séparés) permettant la qualification de cet effet en réactivité est nécessaire. Les biais associés peuvent être soit directement déterminés par la Méthode dite « des Expériences Intégrales » basée sur la ré-estimation des données nucléaires et la représentativité expérimentale, soit pris en compte par l'introduction d'un facteur de pénalité déterminé sur la base des écarts calcul-expérience fournis par cette qualification et de leurs incertitudes associées. Ce facteur de pénalité est alors directement applicable au  $k_{eff}$  après détermination du poids  $FP_i$  en réactivité  $\rho_i$  respectif de chaque isotope dans la configuration étudiée selon :

$$\Delta k_B^\Sigma = \rho_i FP_i \quad (5.2)$$

$i$  désignant l'isotope considéré. Ce sont ces deux méthodologies et leur mise en œuvre sur la base des programmes expérimentaux sélectionnés qui vont être à présent détaillées.

## 5.2 Méthode des Expériences Intégrales et théorie de la représentativité

### 5.2.1 Théorie et exemples d'application

La Méthode des Expériences Intégrales [APPLI-2] permet d'identifier à partir d'une base de qualification les expériences les plus représentatives du cas étudié et d'en déduire le biais sur le  $k_{\text{eff}}$  (paramètre intégral d'intérêt pour les études de sûreté-criticité) et l'incertitude de calcul associée. Lorsque les incertitudes dues aux données nucléaires sur les paramètres intégraux calculés sont issues uniquement des mesures différentielles (matrices de variance/covariance associées aux données nucléaires de base), elles sont appelées « incertitudes a priori ». La prise en compte d'expériences intégrales permet de réduire cette incertitude. La Méthode des Expériences Intégrales se base sur les informations issues des deux types d'expériences pour calculer ces incertitudes dites « a posteriori ». Elle utilise la corrélation entre l'expérience et l'application par l'intermédiaire du coefficient de représentativité de l'expérience intégrale et le transfert d'information de l'expérience intégrale vers les données nucléaires grâce à la méthode d'ajustement statistique basée sur le principe du maximum de vraisemblance.

Les hypothèses retenues sont les suivantes :

- Les biais dus aux schémas de calcul sont traités séparément de la méthodologie, les écarts calcul-expérience considérés ne sont dus qu'aux biais sur les données nucléaires et aux incertitudes expérimentales ;
- les données nucléaires et les paramètres intégraux sont distribués selon une loi de Gauss.

La mise en œuvre de cette méthodologie est la suivante : notons  $I_A$  le vecteur d'un paramètre étudié, ici le  $k_{\text{eff}}$ . L'incertitude de calcul « a priori »  $\epsilon_A$  de  $I_A$  résultant de la propagation des incertitudes sur les données nucléaires de base est donnée par :

$$\epsilon_A = \sqrt{(S_A^+ D_\sigma S_A)}$$

avec  $S_A$  le vecteur des coefficients de sensibilité relatifs de  $I_A$  aux données nucléaires,  $S_A = \frac{\partial I_A}{\partial \sigma_j} / \frac{\partial I_A}{\partial \sigma_j}$ ,  $S_A^+$  matrice transposée et  $D_\sigma$  la matrice de variance-covariance (symétrique définie positive) des données nucléaires. La matrice de variance-covariance décrit les incertitudes de chaque paramètre (variances) et leurs variations simultanées (termes de covariance). Elle peut se décomposer sous la forme :

$$D(\sigma_A, \sigma_B) = \text{var}(\sigma_A) \cdot \text{var}(\sigma_B) \cdot \text{corr}(\sigma_A, \sigma_B)$$

avec

- $\text{corr}(\sigma_A, \sigma_B)$  la matrice de corrélation transcrivant la dépendance entre les différentes mesures utilisées pour la création de la matrice  $D$  ;
- $\text{var}(\sigma_A)$  écart-type isotope 1, réaction 1 ;
- $\text{var}(\sigma_B)$  écart-type isotope 2, réaction 2.

Variances et corrélations ont pour origine la mesure des sections efficaces. Les matrices de covariance sont particulièrement délicates à établir et les valeurs qu'elles contiennent ne sont en général pas obtenues par le biais d'algorithmes mais par expertise et estimation. Cependant, il existe des algorithmes de réduction de covariance qui permettent, en s'appuyant sur des mesures données, de diminuer incertitudes et corrélations entre les sections.

Une série de mesures intégrales est réalisée et  $I_E^{\text{mes}}$  représente le vecteur des valeurs mesurées du paramètre étudié et  $I_E^{\text{calc}}$  celui des valeurs calculées d'après les données nucléaires de base. Les données nucléaires

sont ensuite ajustées par application du principe du maximum de vraisemblance de façon à réduire les écarts entre valeurs calculées et mesurées du paramètre intégral  $I$ . La modification apportée aux sections efficaces se traduit par le vecteur suivant [APPLI-3] :

$$Y_\sigma = \frac{\sigma_j^* - \sigma_j}{\sigma_j} = D_\sigma S_E (D_E + S_E^+ D_\sigma S_E)^{-1} Y_E \quad (5.3)$$

avec

- $Y_\sigma$  : vecteur modification des section efficaces ;
- $\sigma$  : section efficace avant ajustement ;
- $\sigma^*$  : section efficace ajustée ;
- $Y_E$  : vecteur écart calcul expérience,  $Y_E = \frac{I_E^{mes} - I_E^{calc}}{I_E^{mes}}$  ;
- $S_E$  : matrice des coefficients de sensibilité à  $\sigma_j$  de  $I_E$  ;

Les valeurs calculées  $I_A$  peuvent alors être corrigées de  $\Delta I_A = \frac{I_A^* - I_A}{I_A} = S_A Y_\sigma$  et l'incertitude « a posteriori »

associée à  $I_A^*$  est donnée par  $\epsilon_A^* = \sqrt{(S_A^+ D_\sigma^* S_A)}$  avec  $D_\sigma^*$  la matrice de variance-covariance des données nucléaires réestimées.

L'application étudiée différant de l'expérience intégrale du fait de sa complexité et le paramètre étudié  $I_A$  n'étant pas similaire à la mesure  $I_E^{mes}$ , la représentativité de l'information expérimentale par rapport au paramètre calculé  $I_A$  dans l'application étudiée est évaluée par le coefficient de corrélation  $r_{AE}$  appelé « coefficient » ou « facteur » de représentativité défini par :

$$r_{AE} = \frac{S_A^+ D_\sigma S_E}{\epsilon_A \epsilon_E} \quad (5.4)$$

Ce paramètre sans dimension, introduit par Orlov en 1980 [APPLI-4], permet de quantifier la similitude entre une application industrielle et une expérience en terme de sensibilité pour une paramètre intégral donné. Il s'agit d'une méthodologie couramment utilisée en physique des réacteurs [APPLI-5]. Ce coefficient de corrélation vaut 1 lorsque l'expérience est parfaitement représentative du point de vue neutronique de l'application étudiée, 0 lorsqu'elles sont entièrement décorrélées (aucun transfert d'information). Généralement, dans la littérature, un coefficient de représentativité  $r_{AE} \geq 0,9$  caractérise une bonne représentativité de l'expérience retenue par rapport au cas traité. Dans ce cas, la transposition de l'information commune partagée avec les expériences intégrales ainsi sélectionnées, permet de déterminer les biais de calcul et les incertitudes associées dus aux données nucléaires de base sur la grandeur calculée.

Pour évaluer la qualité d'une expérience, on introduit la notion de poids noté  $w_i$  dont dépendent l'importance d'une expérience dans l'ajustement des données nucléaires et son influence sur l'évaluation du biais de calcul et de l'incertitude associée du paramètre calculé. Pour une expérience  $E_i$  considérée, ce poids est fonction du rapport de l'incertitude expérimentale  $\delta E_i$  sur l'incertitude  $\epsilon_{E_i}$  « a priori », liée aux données nucléaires, de l'expérience :

$$w_i = \frac{1}{1 + \delta E_i^2 / \epsilon_{E_i}^2} \quad (5.5)$$

Une expérience qui apporte de l'information est donc une expérience dont l'incertitude expérimentale est faible par rapport à l'incertitude due aux données nucléaires. Si une seule expérience est considérée pour ajuster les données nucléaires, le biais de calcul à appliquer au paramètre calculé  $I_A$  s'exprime par :

$$\frac{\Delta I_A}{\epsilon_A} = r_{AE} w_1 \frac{Y_{E1}}{\epsilon_1} \quad (5.6)$$

et l'incertitude « a posteriori » est donnée par :

$$\frac{\epsilon_A^{*2}}{\epsilon_A^2} = 1 - w_1 r_{AE1}^2. \quad (5.7)$$

Pour un faible facteur de représentativité, le biais appliqué sera donc faible. On remarque sur la Figure 5.2 que la valeur minimale de réduction d'incertitude est fonction du coefficient de représentativité. De plus, plus le rapport  $\delta_E/\epsilon_E$  de l'incertitude expérimentale sur l'incertitude due aux données nucléaires de base est proche de 0 et plus le coefficient de représentativité est grand, plus la réduction d'incertitude qu'il sera possible d'obtenir sera faible.

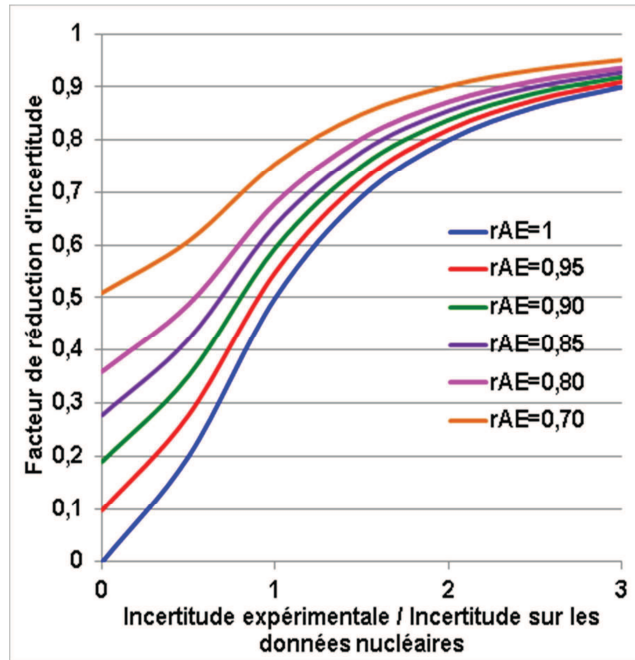


Figure 5.2 – Facteur de réduction d'incertitude en fonction du rapport incertitude expérimentale sur incertitude due aux données nucléaires de base  $\delta_E/\epsilon_E$  pour différentes valeurs du coefficient de représentativité

Si deux expériences sont considérées pour ajuster les données nucléaires, la correction à apporter à  $I_A$  s'exprime par :

$$\frac{\Delta I_A}{\epsilon_A} = \frac{1}{1 - \hat{r}_{E_1 E_2}^2 w_1 w_2} \left[ r_{AE1} w_1 \frac{Y_{E1}}{\epsilon_{E1}} + r_{AE2} w_2 \frac{Y_{E2}}{\epsilon_{E2}} - \hat{r}_{E_1 E_2}^2 w_1 w_2 \left( r_{AE2} \frac{Y_{E1}}{\epsilon_{E1}} + r_{AE1} \frac{Y_{E2}}{\epsilon_{E2}} \right) \right] \quad (5.8)$$

et l'incertitude « a posteriori » est donnée par :

$$\frac{\epsilon_A^{*2}}{\epsilon_A^2} = \frac{1}{1 - \hat{r}_{E_1 E_2}^2 w_1 w_2} \left( r_{AE1} \sqrt{w_1} - r_{AE2} \sqrt{w_2} \right)^2 - \frac{2 \sqrt{w_1 w_2}}{1 + \hat{r}_{E_1 E_2} \sqrt{w_1 w_2}} r_{AE1} r_{AE2} \quad (5.9)$$



avec  $\hat{r}_{E_1 E_2}$  : coefficient de corrélation entre les deux expériences, prenant en compte les corrélations physiques et expérimentales.

Dans le cadre d'une étude de sûreté-criticité, la détermination de ces biais de calcul et incertitude « a posteriori » nécessite de connaître les données suivantes, illustrées dans le synoptique en Figure 5.3 :

- les coefficients de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  aux données nucléaires de l'application pour les différents isotopes mis en jeu. Ceux-ci peuvent être calculés à l'aide d'APOLLO-2 sur la géométrie de l'application étudiée par une méthode de perturbation au premier ordre ou bien par TRIPOLI-4 par la méthode des échantillons corrélés ;
- les incertitudes sur les données nucléaires pour chaque isotope dans chaque macro-groupe énergétique  $g$  ;
- les coefficients de corrélation entre les données nucléaires (inter-macro-groupes, inter sections, inter isotopes) ;
- les écarts calcul-expérience ;
- les incertitudes expérimentales ;
- les coefficients de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  des expériences intégrales aux données nucléaires des différents isotopes.

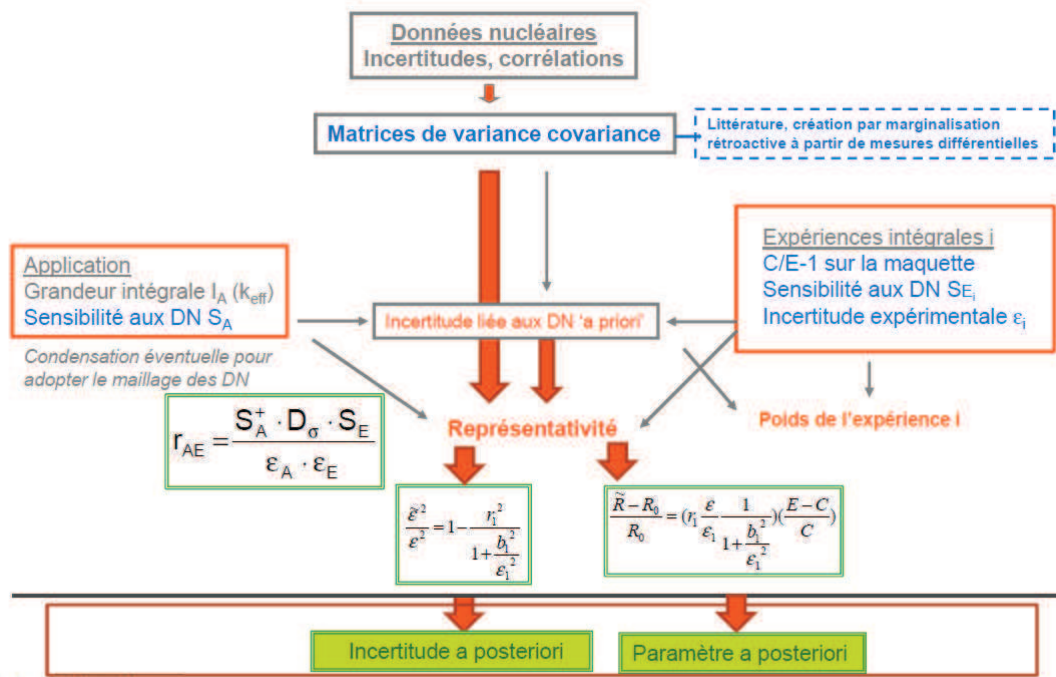


Figure 5.3 – Méthode des Expériences Intégrales

Pour illustration des performances de l'utilisation de cette Méthode des Expériences Intégrales, prenons le cas du benchmark phase I du WPNCs/UACSA. La Méthode des Expériences Intégrales a conduit dans ce cas à réduire fortement les incertitudes dues aux données nucléaires associées au biais de calcul du  $k_{\text{eff}}$ , ce que montre l'exemple des deux configurations critiques de l'ICSBEp suivantes [APPLI-6]. On observe dans le Tableau 5.1 que l'utilisation de la Méthodologie des Expériences Intégrales permet de réduire de 730 pcm à 210 pcm l'incertitude pour un cas de solution Pu. On constate que l'incertitude due aux données nucléaires a été réduite d'un facteur 3.5 pour la configuration PST-005.5 et de 2 pour la configuration IMF-007.1.

	PU-SOL-THERM-005.5	IEU-MET-FAST-007.1
<b>Incertitude a priori due aux données nucléaires</b>	0,0073	0,0186
<b>Incertitude a posteriori due aux données nucléaires</b>	0,0021	0,00945

**Tableau 5.1 – Apport de la Méthodologie des Expériences Intégrales en terme de réduction d’incertitudes (grandeurs en  $\Delta k_{eff}$ )**

Cependant, comme nous pouvons le constater dans l’expression définissant le coefficient de représentativité, la mise en place de cette méthodologie dans le cadre des applications CBU-REP-MOX nécessite de disposer de matrices de covariance réalistes associées à l’évaluation JEFF-3.1.1 pour les isotopes retenus et en particulier pour les produits de fission [APPLI-7].

### 5.2.2 Présentation de l’outil RIB et des développements associés

L’outil RIB (Représentativité, Incertitude, Biais) [APPLI-8] développé en Java au CEA/SPRC constitue un Outil Associé à la version V2 du formulaire CRISTAL. Il s’agit d’un module externe exploitant la Base de Qualification Informatisée DIANE (Database of Integral experiment for Advanced Neutronic Expertise in criticality) développée elle aussi au CEA/SPRC pour les utilisateurs du formulaire CRISTAL. La Figure 5.4 présente un aperçu de l’interface utilisateur de RIB.

**Base de qualification / Représentativité, Incertitude, Biais**

Fichier Base-qualification RIB

**Calcul**

**Application**

Titre de l'application : Water-reflected low-moderated MOX fuel cylinder

keff application : 0.89146 Coefficients de sensibilité : Inties MethodBENCHMARKBLIND\_TESTappli\_UACSA.sensib

**Base expérimentale**

**Expérience extérieure**

Titre de l'expérience :

keff expérimental :

keff calculé :

Coefficients de sensibilité :

**Base de calcul**

Identifiant	keff expérimental	incertitude exp	keff calculé
MIX-COMP-INTER-5-1	1.00000	0.00360	1.00434
MIX-COMP-MIXED-1-4	1.00040	0.00360	0.99088

Calcul à partir d'une expérience Calcul à partir de deux expériences

Figure 5.4 – IHM RIB

Il permet, grâce à la Méthode des Expériences Intégrales, d'évaluer les biais de calcul sur le  $k_{eff}$  et les incertitudes dues aux données nucléaires de base à partir d'une sélection d'expériences intégrales représentatives issues de la base de qualification. RIB peut prendre en considération une ou plusieurs expériences intégrales et considère les réactions suivantes : fission, capture, diffusion ainsi que la multiplicité au travers des fichiers de sensibilité, des incertitudes et des corrélations respectives associées aux données nucléaires. L'ensemble des fichiers contenant ces informations est au format XML. Le maillage énergétique utilisé est le maillage JEF-15 à 15 groupes défini par le groupe européen JEFF afin de traiter les domaines thermique et rapide du spectre [APPLI-8]. Notons que les corrélations expérimentales, apparaissant par exemple lorsque deux expériences sont réalisées au sein du même laboratoire, avec la même instrumentation, ne sont pas renseignées dans la base de RIB dans sa version actuelle. Ainsi, si des expériences très corrélées sont utilisées, l'incertitude « a posteriori » due aux données nucléaires sera sous-estimée. Afin d'éviter d'obtenir un biais systématique dans l'ajustement de l'application choisie, on veillera dans la mesure du possible à utiliser pour la ré-estimation des données nucléaires des expériences provenant de laboratoires différents ou du moins ne présentant pas de corrélation expérimentale. Afin de pouvoir évaluer les pénalités à appliquer au  $k_{eff}$  associées à chaque isotope du CBU REP-MOX et à l'évaluation JEFF-3.1.1, il a été nécessaire de mener plusieurs développements de l'outil RIB. Les fonctionnalités suivantes ont été mises en place. Tout d'abord la possibilité d'importer dans une matrice existante des fichiers de covariances relatifs aux pro-

Groupes	Énergie supérieur (MeV)	Commentaire
1	1,96E+01	Réaction (n,xn) et Fissions de deuxième de troisième chance
2	6,07E+00	Domaine rapide Pic de Fission
3	2,23E+00	
4	1,35E+00	
5	4,98E-01	Première résonance O <sup>16</sup>
6	1,83E-01	
7	6,74E-02	
8	2,48E-02	Domaine non résolu pour les noyaux lourds, grande résonance du Na <sup>23</sup>
9	9,12E-03	Domaine résolu
10	2,03E-03	Domaine résolu, première résonance du Fe <sup>56</sup>
11	4,54E-04	Domaine résolu
12	2,26E-05	Première résonance U <sup>238</sup> résonances importantes
13	4,00E-06	Première résonance Pu <sup>240</sup> , Pu <sup>242</sup>
14	5,40E-07	Première résonance U <sup>235</sup> , Pu <sup>239</sup> et Pu <sup>241</sup>
15	1,00E-07	Domaine purement thermique

**Tableau 5.2 – Maillage de condensation à 15 groupes utilisé dans RIB**

duits de fission du CBU REP-MOX, en particulier les matrices élaborées au cours de ces travaux à partir des données ENDF/B-VII par RDN pour <sup>149</sup>Sm et <sup>103</sup>Rh. La description de ces matrices a été rencontrée sous deux formats de fichiers : .amere et .matrix dont nous donnons un exemple Figures 5.5 et 5.6. Ces deux formats de description des covariances sont utilisés respectivement par les deux codes de condensation qui ont été utilisés afin d'obtenir des données relatives au maillage énergétique à 15 groupes utilisé par RIB : ANGELO-2.3 et CadTui qui seront présentés plus en détail au paragraphe 5.5.

En format .amere, la première ligne décrit deux couples (réaction, isotope). Les deux lignes suivantes présentent les déviations standard de chacun de ces couples pour chacun des groupes énergétiques. Les autres lignes fournissent les valeurs pour deux groupes en énergie du coefficient de corrélation entre les couples choisis (n° de groupe croissant).

code réaction format ENDF		code matériau format ENDF		
102	4525	102	4525	
60.1534	28.4568	14.3957	7.9211	7.0844 8.4721
60.1534	28.4568	14.3957	7.9211	7.0844 8.4721
1.0000	0.7104	0.6350	0.4250	-0.1555 -0.1902
0.7104	1.0000	0.9886	0.9000	-0.4642 -0.5321
0.6350	0.9886	1.0000	0.9516	-0.4444 -0.5187
0.4250	0.9000	0.9516	1.0000	-0.4042 -0.5029

Annotations:   
- "incertitude sur la section 1 par groupe" points to the first two rows of the matrix.   
- "incertitude sur la section 2 par groupe" points to the first two rows of the matrix.   
- "coefficients de corrélation" points to the last four rows of the matrix.

**Figure 5.5 – Extrait de fichier .amere - matrice du <sup>103</sup>Rh ENDF/B-VII.V1 (COMMARA 2.0) condensée à 15 groupes par CadTui**

Les fichiers décrivant les matrices de covariance au format .matrix peuvent se décomposer en deux tableaux distincts : le premier rappelant les bornes du découpage énergétique délimitant chacun des groupes et indiquant pour chacun d'entre eux les incertitudes relatives à la réaction étudiée et le second présentant les coefficients de corrélation entre les différents groupes.

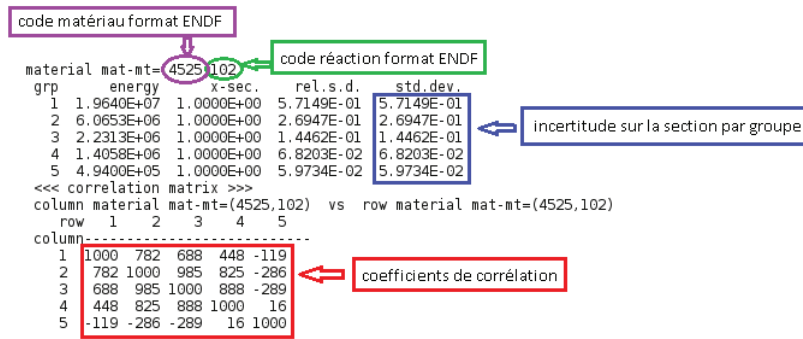


Figure 5.6 – Extrait de fichier .matrix - matrice du  $^{103}\text{Rh}$  (SCALE-6.1) condensée à 15 groupes par ANGELO-2.0

Il est désormais également possible d'importer dans RIB de nouvelles données de covariance pour les noyaux lourds et les isotopes de structure afin de créer une nouvelle matrice de covariance de par :

- l'ajout des codes MAT du format ENDF, repérant les isotopes pour  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{16}\text{O}$ ,  $^{23}\text{Na}$ ,  $^{27}\text{Al}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{52}\text{Cr}$ ,  $^{23}\text{Na}$ ,  $^{10}\text{B}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ , CANAT,  $\text{CH}_2$ ,  $^{58}\text{Ni}$ , GRAPH, SINAT
- la possibilité d'importer des matrices de covariance relatives à des réactions de fission, de diffusion et à des multiplicités après ajout des codes MF du format ENDF désignant ces réactions ;
- la possibilité d'ajouter des corrélations inter-isotopes et intra-réaction ;

Ces fonctions soulignent la généricité de RIB. Des précisions relatives au format d'évaluation ENDF [APPLI-9], évoqué au paragraphe 1.3.2, sont données en **Annexe B**. Afin de répondre aux besoins de la problématique CBU REP-MOX, les données à 15 groupes issues de la base de données de covariances CEA/SPRC COMAC V0 [APPLI-10] et relatives aux isotopes  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{16}\text{O}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{52}\text{Cr}$ ,  $^{10}\text{B}$  (données issues JENDL-4 [APPLI-11]) ont été importées afin d'obtenir une matrice de covariance associée à JEFF-3.1.1 via la fenêtre dédiée (Figure 5.7) ainsi que les données relatives au  $^{58}\text{Ni}$  issues de ENDF/B-VII.V1 et à  $\text{H}_2\text{O}$  (données JENDL-3.3 pour  $\text{H}_2\text{O}^1$ , condensation 15g avec CadTui).

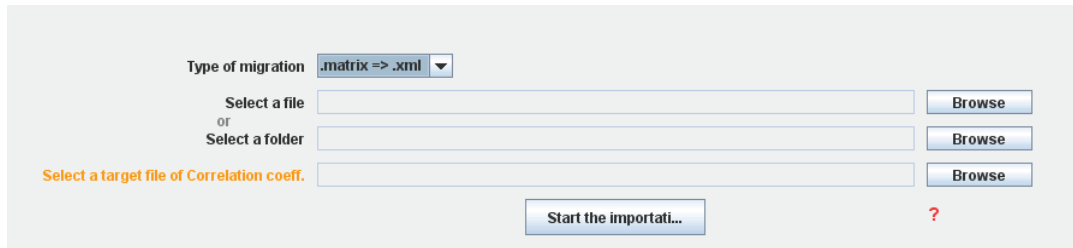


Figure 5.7 – Interface développée dans RIB pour l'importation de matrices de covariance (ici au format .matrix)

### 5.2.3 Base de données de matrices de covariance

Nous allons à présent détailler les données de covariances des sections efficaces disponibles pour la création de cette nouvelle matrice de covariance mise à jour avec les données associées à l'évaluation JEFF-3.1.1 isotope par isotope.

Aucune donnée de covariance n'est disponible pour l' $^{234}\text{U}$  dans COMAC V0.

1. La section efficace de diffusion élastique présente dans JEFF-3.1.1 se situe dans l'intervalle défini par l'incertitude associée à cette même section dans l'évaluation japonaise JENDL-3.3

**Données de covariance de l' $^{235}\text{U}$**  Les matrices de covariances de l' $^{235}\text{U}$  associées à JEFF-3.1.1 présentes dans COMAC V0 ont été déterminées par ré-estimation des données nucléaires via le code RDN [APPLI-12] [APPLI-13] sur la base de matrice de corrélations « a priori » provenant de l'évaluation américaine ENDF/B-V et de valeurs d'incertitudes issues d'un jugement d'expert. Les expériences intégrales prises en compte par RDN et concernant uniquement les réacteurs à eau légère sont les suivantes [APPLI-14] :

- expériences critiques incluses dans les Benchmarks de l'ICSBEP et concernant des solutions d' $^{235}\text{U}$  ;
- mesures de  $k_{\text{eff}}$  et de laplaciens au cours de programmes dans la maquette critique EOLE du CEA Cadarache ;
- expériences post-irradiation sur des assemblages REP UOx et MOx issus respectivement des centrales EDF de Bugey, Fessenheim, Gravelines et Saint-Laurent.

Les données relatives au domaine du continuum proviennent de l'évaluation américaine ENDF/B-VII.V1.

Des matrices sont en cours d'élaboration pour l' $^{236}\text{U}$ .

**Données de covariance de l' $^{238}\text{U}$**  Les matrices de covariance de l' $^{238}\text{U}$  présentes dans COMAC sont issues d'un travail de marginalisation rétro-active mené au SPRC/LEPh grâce au code CONRAD [APPLI-15] et basé sur l'évaluation JEFF-3.1.1. La technique de marginalisation a permis la propagation des incertitudes expérimentales du bruit de fond et du niveau de la section efficace (normalisation) sur la base d'une expérience de transmission (Olsen, 1977) afin d'estimer les incertitudes sur la section totale.

**Données de covariance du  $^{238}\text{Pu}$**  Les données de covariances relatives au  $^{238}\text{Pu}$  sont issues de l'évaluation japonaise JENDL-4.0.

**Données de covariance du  $^{239}\text{Pu}$**  Les données relatives au domaine des Résonnances Résolues sont issues de travaux de marginalisation rétroactive réalisés avec CONRAD. Les corrélations dans le domaine du continuum proviennent de l'évaluation japonaise JENDL-4.0.

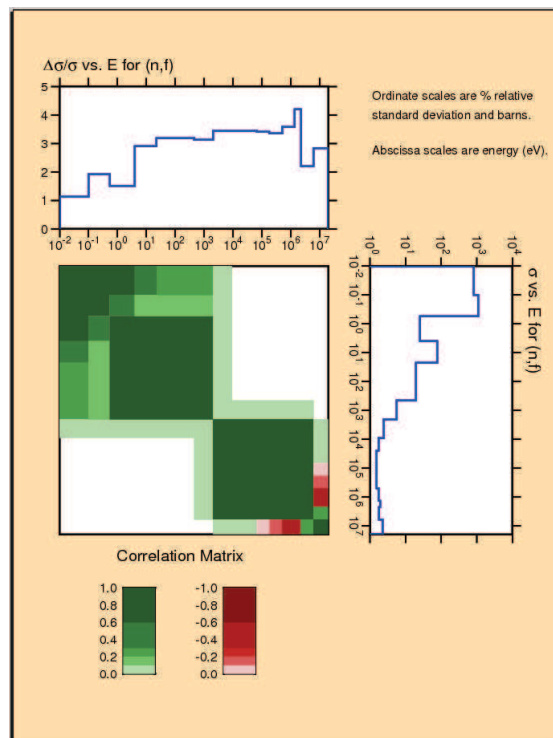


Figure 5.8 – Matrice de corrélations et incertitudes multigroupes de la fission du  $^{239}\text{Pu}$  - COMAC V0

**Données de covariance du  $^{240}\text{Pu}$**  Les données de covariances relatives au  $^{240}\text{Pu}$  ont pour origine l'évaluation américaine ENDF/B-VII.V1.

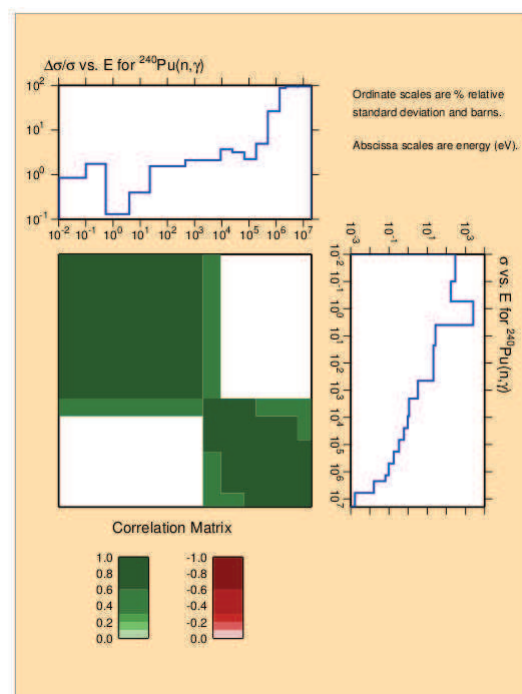
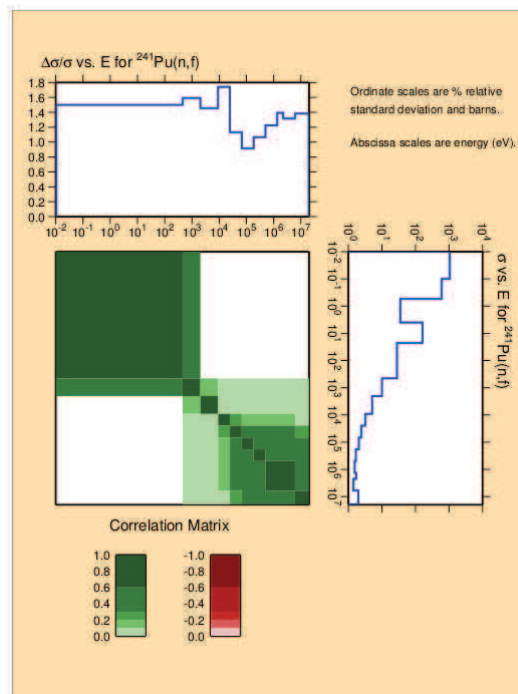


Figure 5.9 – Matrice de corrélations et incertitudes multigroupes de la capture du  $^{240}\text{Pu}$  - évaluation ENDF/B-VII.V1



**Données de covariance du  $^{241}\text{Pu}$**  Les données de covariances relatives au  $^{241}\text{Pu}$  ont pour origine l'évaluation américaine ENDF/B-VII.V1.



**Figure 5.10 – Matrice de corrélations et incertitudes multigroupes de la fission du  $^{241}\text{Pu}$  - évaluation ENDF/B-VII**

**Données de covariance du  $^{242}\text{Pu}$**  Les matrices de covariances relatives au  $^{242}\text{Pu}$  sont issues de l'évaluation américaine ENDF/B-VII.V1.

**Données de covariance du  $^{237}\text{Np}$**  Les données relatives au domaine des Résonnances Résolues sont issues de travaux de marginalisation rétroactive réalisés avec CONRAD. Les corrélations dans le domaine du continuum proviennent de l'évaluation japonaise JENDL-4.0.

**Données de covariance de l' $^{241}\text{Am}$**  Les travaux de marginalisation retro-active permis par CONRAD ont été réalisés dans le domaine des Résonnances Résolues sur la base des nouvelles mesures de capture et transmission réalisées sur l'installation GELINA dans le cadre d'une collaboration CEA/IRMM [APPLI-16]. Par le biais du processus d'Assimilation des Données Intégrales disponible dans CONRAD, les expériences intégrales menées à l'ILL et dans les réacteurs MINERVE, EOLE, MASURCA, RAPSODIE, MELUSINE et PHENIX sont prises en compte. Les données relatives au domaine du continuum proviennent de l'évaluation japonaise JENDL-4.0.

La base COMAC-V0 ne contient aucune donnée de covariance concernant l' $^{242\text{m}}\text{Am}$  et les données relatives à l' $^{243}\text{Am}$  sont issues de l'évaluation japonaise JENDL-4.0. Les matrices de covariances relatives aux trois isotopes du curium ( $^{243}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$  et  $^{245}\text{Cm}$ ) pris en compte dans les études CBU REP-MOX présentes dans la base de données COMAC-V0 proviennent de l'évaluation américaine ENDF/B-VII.V1.

Des données de corrélation inter-isotopes pour  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$  pour la multiplicité et la section effi-

cace de fission égales à 0,5 issues des standards utilisés lors de la normalisation des expériences différentielles [APPLI-8] sont considérées dans la matrice incluant les données de variance-covariances provenant de COMAC V0. Les données de variance-covariance de la matrice du  $^{58}\text{Ni}$  importées ont pour origine la base de données de covariances américaine associée à l'évaluation ENDF/B-VII.V1. Elles ont été condensées à 15 groupes grâce à l'utilitaire CadTui.

Un première utilisation de cette nouvelle matrice associée à JEFF-3.1.1 a été effectuée sur un cas test issu de la base de qualification DIANE (Database of Integral Experiments for Advanced Neutronics Expertise in criticality) du formulaire CRISTAL [APPLI-17] afin de tirer quelques premières conclusions quant à l'impact du choix de la matrice de covariance utilisée sur une application mettant en œuvre du plutonium. Pour cela deux expériences critiques concernant des solutions de nitrate de plutonium recensées dans le handbook de l'ICSBEP dans la catégorie MIX-SOL-THERM (MIXed oxyde-SOLution-spectre THERMique) ont été arbitrairement choisies (Laboratoire AWE-UK). Lors du calcul RIB, l'expérience MIX-SOL-THERM-003-1 est considérée comme l'application industrielle étudiée et MCT-003-2 est l'information intégrale. Leurs caractéristiques figurent dans le Tableau 5.3 :

Identifiant ICSBEP	Concentration (g/L)	$^{239}\text{Pu}/\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}/\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}/\text{Pu}$	Epaisseur réflecteur	Rapport de modération
MIX-SOL-THERM-003-1	329,8	93,95	5,63	0,307	29,090	68,771
MIX-SOL-THERM-003-2	329,8	93,95	5,63	0,307	68,440	68,771

Tableau 5.3 – Expériences MIX-SOL-THERM sélectionnées

Les valeurs du coefficient de représentativité de l'expérience MCT-003-2 par rapport à l'application industrielle (MCT-003-1) ainsi que des incertitudes a priori et a posteriori obtenues sont présentées dans le Tableau 5.4 :

	Représentativité	Incertitude a priori	Incertitude a posteriori
Matrice JEFF-3.1.1	0,99996	1142 pcm	196 pcm
Matrice JEF-2.2	0,99964	843 pcm	193 pcm

Tableau 5.4 – Comparaison des représentativités et incertitudes a priori et a posteriori obtenues respectivement avec les matrices de covariances associées à JEFF-3.1.1 et JEF-2.2 implantées dans RIB pour des solutions de nitrate de plutonium

On constate que l'impact du choix de la matrice de covariance utilisée dont la structure est restée semblable sur la valeur du coefficient de représentativité est très faible contrairement à celui observé sur les valeurs d'incertitudes a priori et a posteriori. Les profils de sensibilités à 15 groupes sont très semblables pour ces deux expériences ainsi que les valeurs de coefficients de sensibilité à un groupe aux différentes réactions prises en compte (valeurs issues de calculs APOLLO-2 Sn) comme le montrent les Figures 5.11.

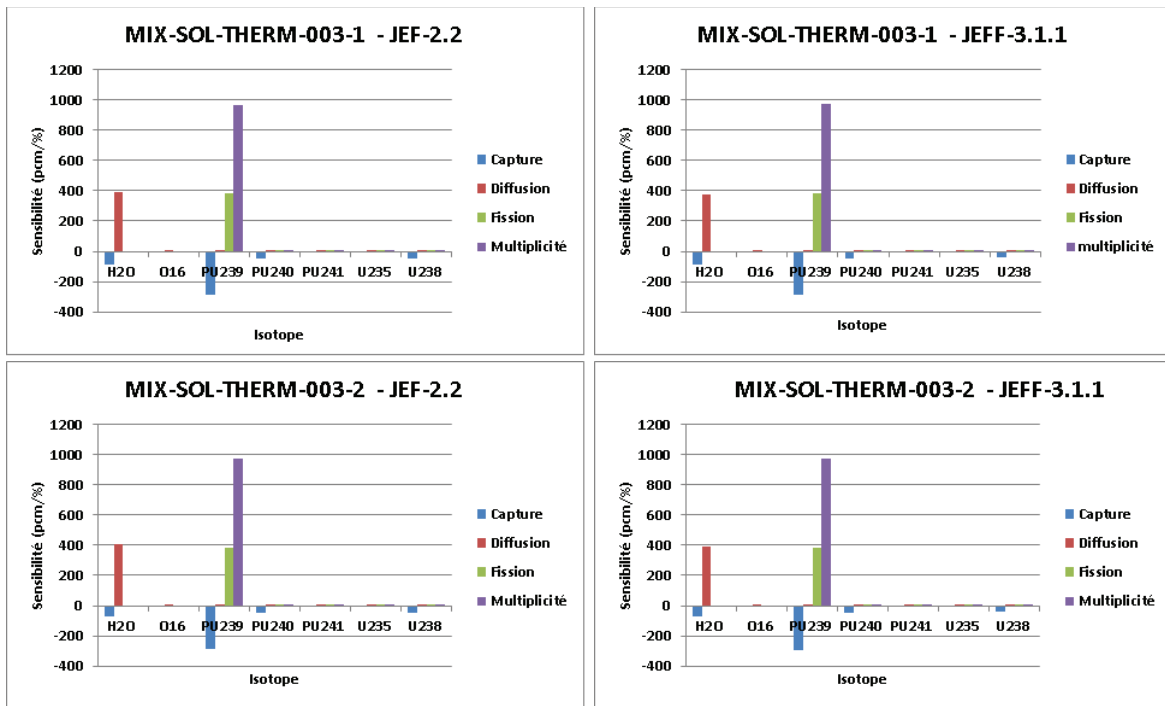


Figure 5.11 – Sensibilités du  $k_{\text{eff}}$  à la capture, à la diffusion, à la fission et à la multiplicité pour les principaux isotopes considérés dans les expériences MIX-SOL-THERM-003-1 et MIX-SOL-THERM-003-2 à 1 groupe - JEF-2.2 et JEFF-3.1.1

On remarque pour chacune des expériences que le  $k_{\text{eff}}$  est essentiellement sensible à la multiplicité, à fission et à la capture du  $^{239}\text{Pu}$  ainsi qu'à la diffusion de l'eau. Les incertitudes associées au  $^{239}\text{Pu}$  sont plus fortes dans la matrice de covariance associée à JEFF-3.1.1 que dans celle associée à JEF-2.2 ainsi que les corrélations entre les groupes. Ces différences sont à l'origine d'une augmentation de près d'un tiers de l'incertitude totale car les incertitudes liées à la diffusion de l'eau sont plus faibles dans la matrice associée à JEFF-3.1.1.

### 5.3 Evaluation des biais de calcul liés à l'antiréactivité des actinides

Nous allons à présent nous intéresser aux programmes expérimentaux permettant d'évaluer les biais liés à l'antiréactivité des actinides du CBU REP-MOX.

#### 5.3.1 Sélection d'expériences pertinentes

##### 5.3.1.1 Expériences critiques relatives à des réseaux de combustible MOX

L'ICSBEP (International Criticality Safety Benchmark Evaluation Project) est un groupe de travail de l'OCDE/AEN ayant pour objectifs :

- d'identifier un ensemble complet d'expériences critiques et d'en vérifier les données descriptives présentes dans les rapports d'expériences avec l'aide des expérimentateurs ou de spécialistes des installations utilisées ;
- d'évaluer les données et de quantifier l'ensemble des incertitudes grâce à différentes analyses de sensibilité ;
- de compiler les données dans un format standardisé ;

- de modéliser chaque expérience avec les codes usuels de sûreté-criticité ;
- de mettre à la disposition de la communauté internationale une documentation unique (« International Handbook of Evaluated Criticality Safety Benchmark Experiments ») présentant les expériences de criticité de référence appelées « Benchmarks ».

Dans ce document contenant la description de 4708 benchmarks, a été définie une structure de classification en catégories des expériences en fonction de la nature du matériau fissile, de la forme physique du milieu et du spectre neutronique. Au sein de leur catégorie, les benchmarks sont identifiés par un numéro de série, un identifiant correspondant au cas considéré, avec un éventuel identifiant associé à la modélisation proposée (détaillée ou simplifiée). Parmi les expériences critiques référencées, la catégorie MIX-COMP-THERM (U+Pu-COMPound-THERMal) regroupe au total 197 expériences mettant en oeuvre des crayons d'oxyde mixte de plutonium et d'uranium disposés en réseaux dans l'eau, c'est-à-dire des réseaux de crayons MOX. Dans ces configurations, les proportions d' $^{235}\text{U}$  et de  $^{239}\text{Pu}$  varient respectivement entre 0,16 et 59,73% et entre 68,34 à 91,83%. Certaines d'entre elles sont empoisonnées avec du bore.

De toutes ces configurations, nous retenons celles dont les teneurs plutonium et l'isotopie associée sont les moins éloignées de celles d'un combustible REP-MOX standard et dont les incertitudes expérimentales sont les plus faibles en veillant à la diversité de leur origine afin d'éviter les corrélations expérimentales (Tableau 5.5).

Expérience	Installation	Pas du réseau	Vecteur Pu	Rapport de Modération
MCT-3-4 <sub>s</sub>	CRX-USA	carré	<sup>239</sup> Pu/Pu 90,61 % <sup>240</sup> Pu/Pu 8,58 % <sup>241</sup> Pu/Pu 0,77 % <sup>242</sup> Pu/Pu 0,04 % Teneur Pu 6,6 %	4,706
MCT-3-6 <sub>s</sub>	CRX-USA	carré	<sup>239</sup> Pu/Pu 90,61 % <sup>240</sup> Pu/Pu 8,58 % <sup>241</sup> Pu/Pu 0,77 % <sup>242</sup> Pu/Pu 0,04 % Teneur Pu 6,6 %	10,754
MCT-4-4	JAERI	carré	<sup>239</sup> Pu/Pu 68,36 % <sup>240</sup> Pu/Pu 22,08 % <sup>241</sup> Pu/Pu 7,02 % <sup>242</sup> Pu/Pu 2,05 % Teneur Pu 3 %	2,976
MCT-5-1	Handford USA	triangulaire	<sup>239</sup> Pu/Pu 75,50 % <sup>240</sup> Pu/Pu 18,21 % <sup>241</sup> Pu/Pu 4,85 % <sup>242</sup> Pu/Pu 1,17 % Teneur Pu 4 %	1,931
MCT-7-1	Handford USA	triangulaire	<sup>239</sup> Pu/Pu 81,31 % <sup>240</sup> Pu/Pu 16,65 % <sup>241</sup> Pu/Pu 1,84 % <sup>242</sup> Pu/Pu 0,20 % Teneur Pu 2 %	2,488
MCT-8-2	PNL-USA	triangulaire	<sup>239</sup> Pu/Pu 71,68 % <sup>240</sup> Pu/Pu 23,57 % <sup>241</sup> Pu/Pu 4,08 % <sup>242</sup> Pu/Pu 0,67 % Teneur Pu 2 %	2,488
MCT-11-1	VALDUC	triangulaire	<sup>239</sup> Pu/Pu 89,30 % <sup>240</sup> Pu/Pu 9,57 % <sup>241</sup> Pu/Pu 0,87 % <sup>242</sup> Pu/Pu 0,07 % Teneur Pu 2,57 %	11,371

**Tableau 5.5 – Expériences MIX-COMP-THERM sélectionnées**

Pour chacune de ces configurations, un calcul de sensibilité à 15 groupes a alors été effectué avec la voie APOLLO2-Sn du formulaire CRISTAL V2.0, les résultats de qualification de la voie ponctuelle « TRIPOLI-4 » n'étant pas disponibles pour ces configurations critiques dans le temps imparti aux travaux de thèse. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau 5.6. Les écarts calcul-expérience sont issus de calculs à 281 groupes afin de s'affranchir des effets de schémas liés à la condensation énergétique.

Expérience critique	$k_{\text{eff exp}}$	$\sigma_{\text{exp}}$ (pcm)	Ecart C-E APOLLO-2.8/Sn/CEAv5.1.2/SHEM (pcm)
MCT-3-4_s	1,00270	310	996
MCT-3-6_s	1,00000	230	823
MCT-4-4	1,00000	390	129
MCT-5-1	1,00080	220	327
MCT-7-1	1,00230	350	553
MCT-8-2	1,00000	300	131
MCT-11-1	1,00000	240	324

Tableau 5.6 – Comparaison calcul-expérience pour les benchmarks MIX-COMP-THERM sélectionnés

Ces résultats de qualification relatifs à des expériences critiques portant sur des réseaux de combustibles MOx vont permettre grâce à la Méthode des Expériences Intégrales et à l'outil RIB de déterminer le biais et l'incertitude associée relatifs à la réactivité des assemblages REP-MOx entreposés en piscine ou placés en château de transport (hors produits de fission et actinides mineurs  $^{243}\text{Am}$  et isotopes du curium).

### 5.3.1.2 Programme d'oscillation OSMOSE REP-MOx dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE

Concernant l'évaluation de l'effet en réactivité des actinides du CBU REP-MOx, un programme expérimental est particulièrement intéressant. Il s'agit du programme expérimental OSMOSE [APPLI-18] (OScillations dans Minerve d'iSotopes dans des Spectres Eupraxiques) qui a été mené dans le réacteur MINERVE dans le but d'améliorer la connaissance des sections efficaces des actinides et donc de qualifier ces données dans des spectres représentatifs de réseaux REP-UOx (réseau R1UO2) et REP-MOx (réseau R1MOX). Ce programme s'inscrit dans le cadre d'études concernant le recyclage du plutonium, l'incinération et la transmutation des actinides ainsi que la perte de réactivité au cours du cycle et a consisté en l'oscillation d'échantillons à support UO<sub>2</sub> naturel fritté, dopés avec les isotopes séparés suivants :  $^{233,234,235,236,238}\text{U}$ ,  $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{244,245}\text{Cm}$ . Pour ces mesures, deux séries d'échantillons de calibration ont été utilisées :

- matrice UO<sub>2</sub> avec différents enrichissements en  $^{235}\text{U}$  (0,25%, 0,5%, 0,72%, 1%, 2%, 3%, 4% et 4.95%) ;
- échantillons borés sur matrice UO<sub>2</sub> avec différentes teneurs en  $^{10}\text{B}$  (0, 60, 100, 150, 200, 299, 333, 400, 419, 500 et 1062 ppm).

Ce programme constitue un complément au programme CBU concernant les produits de fission séparés ainsi que la qualification de l'empoisonnement au cours de l'irradiation. L'interprétation de ces oscillations dans le réseau représentatif REP-MOx, réalisée à l'aide du formulaire PIMS (Méthode des Caractéristiques), fournit les écarts calcul-expérience suivants pour les trois actinides nous intéressant dans le cadre du CBU REP-MOx non présents dans les expériences critiques MIX-COMP-THERM précédemment évoquées (Tableau 5.7) [APPLI-19] :

Isotope	C/E-1 (%) R1MOX	C/E-1 (%) R1UO2
$^{237}\text{Np}$	$+2,0 \pm 3,7$	$+0,8 \pm 3,7$
$^{241}\text{Am}$	$-4,2 \pm 2,4$	$-3,8 \pm 2,8$
$^{243}\text{Am}$	$+3,1 \pm 3,8$	$+4,7 \pm 3,4$
Cm	$+17 \pm 13$	$+10 \pm 12$

Tableau 5.7 – Ecart C/E-1 (%) sur l'effet en réactivité des actinides mineurs dans MINERVE-OSMOSE

Ces valeurs d'écarts calcul-expérience représentatifs du biais lié aux données nucléaires de l'évaluation JEFF-3.1.1 vont nous permettre de déterminer des facteurs de pénalité FP prenant en compte l'incertitude expérimentale totale de ces mesures d'oscillations à appliquer sur le poids en réactivité de chacun de ces isotopes.  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$  et  $^{243}\text{Am}$  étant des isotopes absorbants, l'écart C/E est conservatif pour  $^{241}\text{Am}$ , mais l'écart C/E est positif et non conservatif pour  $^{237}\text{Np}$  et  $^{243}\text{Am}$ . Ces écarts doivent de plus être pénalisés de l'incertitude expérimentale ( $1,65 \sigma$  qui correspond à un intervalle de confiance de 95 %). Pour le curium, l'effet en réactivité semble surestimé de 10 %, ce qui est conservatif pour ces isotopes pour lesquels le faible effet en réactivité est positif [APPLI-20].

$$FP = \frac{1}{1 + \Delta}$$

avec

$$\Delta = (C/E - 1) + 1,65\sigma$$

Le Tableau 5.8 regroupe les facteurs de pénalité ainsi obtenus.

Isotope	Facteur de pénalité
$^{237}\text{Np}$	0,93
$^{241}\text{Am}$	1,0
$^{243}\text{Am}$	0,91
Cm	0,96

**Tableau 5.8 – Facteurs de pénalité JEFF-3.1.1 à appliquer dans les combustibles irradiés au poids en réactivité du  $^{237}\text{Np}$  et de  $^{243}\text{Am}$**



### 5.3.1.3 Données nucléaires

Aucune donnée expérimentale n'étant disponible pour les isotopes  $^{236}\text{U}$  et  $^{242\text{m}}\text{Am}$ , les facteurs de pénalité à appliquer à leur effet en réactivité sont déterminés à partir des incertitudes sur leur section de capture respective fournies dans la littérature (données JEFF-3.1.1 et COMMARA 2.0) :

- 4 % pour  $^{236}\text{U}$
- 25 % pour  $^{242\text{m}}\text{Am}$

Le Tableau 5.9 synthétise alors les facteurs de pénalité appliqués à l'effet en réactivité de chacun des actinides retenus dans le cadre de la problématique CBU REP-MOX.

Actinide	Facteur de pénalité
$^{234}\text{U}$	Déterminé par RIB à partir des expériences critiques MOx
$^{235}\text{U}$	
$^{238}\text{U}$	
$^{238}\text{Pu}$	
$^{239}\text{Pu}$	
$^{240}\text{Pu}$	
$^{241}\text{Pu}$	
$^{242}\text{Pu}$	
$^{241}\text{Am}$	1,0
$^{242\text{m}}\text{Am}$	0,80
$^{243}\text{Am}$	0,91
Cm	0,96
$^{236}\text{U}$	0,96
$^{237}\text{Np}$	0,93

Tableau 5.9 – Facteurs de pénalité issus de la qualification de l'effet en réactivité des actinides d'un combustible REP-MOX

## 5.4 Evaluation des biais de calcul liés à l'antiréactivité des produits de fission

### 5.4.1 Sélection d'expériences pertinentes

Peu d'expériences sont disponibles concernant l'évaluation de l'antiréactivité des produits de fission du CBU, plus encore dans un spectre représentatif d'une application REP-MOX et l'accès à leurs résultats est presque toujours confidentiel. Des expériences d'oscillations d'échantillons de combustible irradié et de PF séparés ont été menées dans des spectres représentatifs des applications REP (UOx et MOx) [APPLI-21] mais aussi REB dans le réacteur MINERVE. Les échantillons oscillés sont dopés avec les principaux PF du CBU de sorte à mesurer leur antiréactivité : échantillons  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ . Les réseaux disponibles pour ces programmes, dits « R1UO2 », « R2UO2 », « R1MOX » sont respectivement représentatifs de l'entreposage en piscine et du transport en château et de la dissolution. Il existe également d'autres programmes internationaux mentionnés dans la littérature (Tableau 5.10) que nous pouvons citer pour des études concernant la perte de réactivité des combustibles prenant en compte les produits de fission du combustible irradié :

- programme REBUS (Mol-Belgique), combustibles étudiés : combustible neuf enrichi à 3.3% de référence, combustible neuf REP AREVA, combustible irradié à 54 GWj/t provenant de Neckarwestheim NPP, Allemagne) [APPLI-22] ;
- programme REL PROTEUS Phase II (Suisse), [APPLI-23] (5 crayons UO<sub>2</sub> de burn-up respectifs 36, 36,5, 64,4, 64,8, 81,9, 80,2 GWj/t) ;

- expériences intégrales dans l'appareillage B de l'IRSN à Valduc [APPLI-24].

Programme	Date	Nucléides	Spectre	Technique
Appareil B	1998-2004	6 PF	Réseau REP- $\text{UO}_2$	Expérience critique
CERES	1992-1994	12 PF	Réseau REP- $\text{UO}_2$	Oscillation
MINERVE CBU	1994-2001	13 PF	Réseaux REP- $\text{UO}_2$ et REP-MOx	Oscillation
PROTEUS	2001-2003	5 PF	Réseaux REP- $\text{UO}_2$ et REP-MOx	Oscillation
SANDIA	1987	$^{103}\text{Rh}$	Réseau REP- $\text{UO}_2$	Expérience critique
STACY	2009	Cs, Sm, Eu, Gd	Réseau REP- $\text{UO}_2$	Expérience critique
MINERVE MAESTRO	2012	$^{103}\text{Rh}$	Réseau REP- $\text{UO}_2$	Oscillation

**Tableau 5.10 – Recensement des expériences mettant en oeuvre les PF du CBU – applications REP**

Dans le but d'évaluer l'antiréactivité apportée par les produits de fission dans le combustible irradié, une série d'expériences critiques a également été menée au Japon par JAEA dans le but d'introduire la prise en compte d'un « CBU actinides + Produits de fission » pour les activités de retraitement. Les conditions du procédé de dissolution utilisé ont été reproduites dans la cuve de STACY (Static Critical Experiment Facility) pour une expérience de type Appareil B à Valduc mettant en jeu des crayons d'uranium enrichi à 5% en  $^{235}\text{U}$  baignant dans une solution nitrique composée de combustible  $\text{UOx}$  enrichi à 6% en  $^{235}\text{U}$  dissout et de sels de samarium, césium, rhodium et europium, la criticité étant atteinte par variation de la hauteur de cette solution dans la cuve [APPLI-25].

Parmi toutes ces expériences, le programme d'oscillations de produits de fission séparés dans le réacteur MINERVE, dont nous disposons des résultats, apparaît comme particulièrement pertinent du fait de :

- l'oscillation des échantillons dans plusieurs réseaux dont un au spectre représentatif d'un réseau REP-MOx, des tendances peuvent ainsi être interprétées en comparant différents spectres ;
- les échantillons sont dopés par un seul isotope ;
- l'isotope produit de fission séparé est introduit dans les pastilles  $\text{UO}_2$  (comme dans les combustibles irradiés) les tendances obtenues sont donc directement transposables à la section de capture de l'isotope dopant ;
- la technique d'oscillation utilisée est particulièrement bien adaptée aux mesures précises de faibles effets en réactivité :  $10 \text{ pcm} \pm 0.02 \text{ pcm}$  observés dans MINERVE [APPLI-26].

Les résultats d'interprétation des programmes d'oscillation CBU et MAESTRO seront donc retenus dans le cadre de notre étude afin d'évaluer les biais de calcul liés à l'antiréactivité des produits de fission sélectionnés.

#### 5.4.2 Programme d'oscillation CBU REP-MOx dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE

Les expériences d'oscillation dans la maquette critique MINERVE ont pour objectif de caractériser les grandeurs neutroniques des isotopes d'intérêt pour la physique des réacteurs (produits de fission, actinides mineurs, . . .), ainsi que différents types de combustibles. Elles consistent à mesurer la variation de réactivité liée à l'insertion en centre cœur d'un échantillon contenant le matériau à caractériser. En représentant le plus exactement possible l'expérience, on cherche en particulier à obtenir des informations sur les données nucléaires de base des isotopes présents dans les échantillons oscillés.

Compte-tenu des difficultés associées à la fabrication des échantillons et de la disponibilité de MINERVE, le programme expérimental Crédit Burn-up s'est étalé de 1993 à 2001 et s'est déroulé en quatre étapes en fonction de l'intérêt porté aux différents types de combustible (REP- $\text{UOx}$ , REP-MOX, REB, spectre dissolvant R2 $\text{UO}_2$ ).

### 5.4.2.1 Le réacteur MINERVE

Le réacteur MINERVE (Figure 5.12) est une maquette critique de type piscine (eau légère) où sont réalisées des expériences dites « intégrales » (expériences réalisées dans des réacteurs de puissance ou des réacteurs expérimentaux et concernant des grandeurs exprimées mathématiquement par des intégrales de sections efficaces) mettant en œuvre diverses configurations de réseaux REP ou REB dans le but de qualifier des outils de calcul. Malgré sa très faible puissance (100 W), le flux neutronique atteint est de l'ordre de  $10^9 \text{ n/cm}^2.s$  et son comportement permet de rendre directement compte des phénomènes physiques observés dans des réacteurs de puissance.

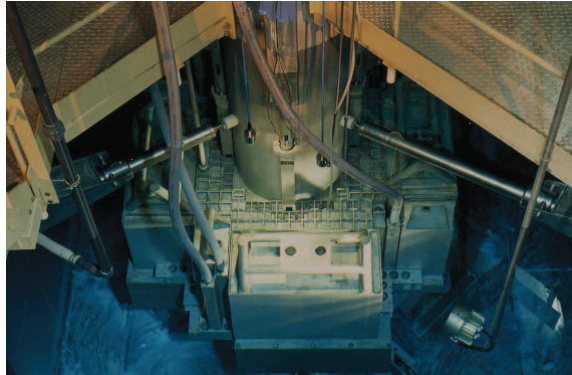


Figure 5.12 – Vue du coeur du réacteur MINERVE

Il présente les avantages d'une maquette critique :

- sûreté ;
- flexibilité en terme de spectre ;
- facilité d'instrumentation ;
- faible coût des expériences.

Le cœur de MINERVE, dont le refroidissement est assuré par convection naturelle, se divise en deux zones distinctes comme illustré Figure 5.13. La première, centrale, dite « zone expérimentale » accueille les réseaux expérimentaux représentatifs des différentes filières ainsi que la canne d'oscillation des échantillons. La seconde, périphérique, est appelée « zone nourricière ». Elle est entourée de réflecteurs en graphite et est constituée d'assemblages à plaques d'alliage aluminium/uranium d'enrichissements 90 et 93% en  $^{235}\text{U}$ . Le contrôle du réacteur est assuré par quatre barres d'hafnium.



rotor et d'un stator, couverts de secteurs de cadmium dont le recouvrement plus ou moins important provoque une variation de réactivité pouvant aller jusqu'à 20 pcm. Grâce à des échantillons étalons de même géométrie que les échantillons de mesure, on peut alors déterminer expérimentalement une relation entre la variation de réactivité dans le cœur et l'angle de rotation de la barre de pilotage : c'est la calibration du signal. Les échantillons étalons sont constitués de corps dont on connaît bien les sections de fission et d'absorption. Ils se répartissent en deux catégories :

- échantillons fissiles constitués d'uranium enrichi à 0,21, 0,71, 3,0 et 5,0% ;
- échantillons absorbants : constitués soit d'uranium enrichi à 0,25% contenant 0, 150 et 490 ppm de bore, soit d'uranium enrichi à 0,53% contenant 0, 333, 1062 ppm de bore.

Le résultat de l'expérience est donc directement proportionnel à l'écart de réactivité entre l'échantillon mesuré et l'échantillon étalon. Pour chaque échantillon, la moyenne des signaux délivrés par le pilote, ainsi que l'écart type associé aux valeurs sont exprimés en kup (kilo unités de pilote), unité de réactivité représentant directement l'angle de rotation de la barre de contrôle du pilote. Chaque échantillon a été mesuré plusieurs fois, chaque mesure correspondant à 20 oscillations. Les échantillons de produits de fission séparés ont été mesurés 3 fois. Un nombre supérieur de cycles d'oscillations compris entre 5 et 10 a été effectué pour les échantillons étalons, de manière à obtenir une calibration du réseau aussi fiable que possible. L'écart type associé à l'oscillation de chaque échantillon correspond à :

$$\sigma_i = \sqrt{\frac{\sigma_{si}^2}{NC_i} + \frac{\sigma_{ri}^2}{NM_i}}$$

avec :

- $i$  : échantillon  $i$  ;
- $\sigma_{si}$  : écart statistique moyenné sur la campagne d'oscillation ;
- $NC_i$  : nombre de cycles d'oscillation de l'échantillon  $i$  (en général 20) ;
- $\sigma_{ri}$  : écart de reproductibilité moyenné sur la campagne d'oscillation ;
- $NM_i$  : nombre de mesures effectuées sur l'échantillon  $i$  (en général 3).

Au voisinage de la criticité ( $k_{eff} \approx 1$ ) les équations de la cinétique point décrivent de la façon suivante la réponse d'un réacteur à une perturbation locale de réactivité :

$$\frac{dn(t)}{dt}_{decteur} = \frac{\rho(t) - \beta}{\theta} n(t) + \sum_i \lambda_i C_i(t)$$

$$\frac{dC_i(t)}{dt} = \frac{\beta_i}{\theta} n(t) + \sum_i \lambda_i C_i(t)$$

avec :

- $n$  la densité neutronique ;
- $\rho$  la réactivité du système ;
- $\beta$  la fraction totale de neutrons retardés ;
- $\theta$  le temps de vie des neutrons ;
- $\lambda$  la constante de décroissance des précurseurs de neutrons retardés ;
- $C$  concentration des précurseurs de neutrons retardés  $i$  groupe de neutrons retardés.

A l'équilibre, cette variation de réactivité est compensée, le flux est constant donc :

$$\rho_{ech} + \rho_{ref} = 0$$

d'où l'égalité des réactivités des deux échantillons.

### 5.4.2.3 Le réseau R1MOX

Les échantillons sont placés au centre du massif REP, appelé MELODIE. Le massif MELODIE est cylindrique, de diamètre 712 mm et se compose de blocs d'aluminium enveloppant le réseau central (800 crayons au pas standard de 1,26 cm) ainsi que de deux grilles en aluminium. Il est placé à l'intérieur d'une cuve cylindrique elle aussi en aluminium et de diamètre 715 mm, située au centre d'une cavité carrée entourée par la zone nourricière. Pour ramener le rapport de modération de la zone étudiée dans MINERVE (température ambiante) à celui d'un REP type 17x17 à chaud, une surgaine est placée dans chaque cellule du réseau. A l'intérieur de cette surgaine peuvent être placés un crayon combustible ou un crayon aluminium. Le trou peut également rester libre et être rempli d'eau. Dans la configuration R1MOX, la zone centrale du massif MELODIE (Figure 5.15) est constituée de [APPLI-28] :

- 620 crayons  $\text{UO}_2$  enrichi à 3% ;
- 128 crayons MOx ( $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$ ) avec une teneur Pu de 4% ;
- 28 crayons MOx avec une teneur Pu de 3,6% ;
- 24 crayons aluminium ;
- l'échantillon dans la cellule centrale.

#### Réseau REP-MOX (R1-MOX)

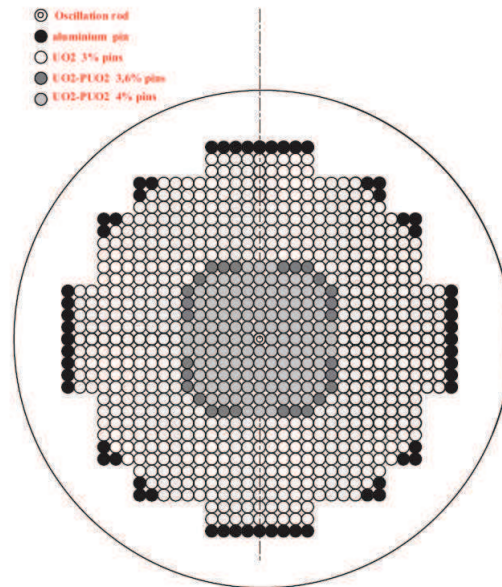


Figure 5.15 – Configuration du réseau R1MOX

La hauteur fissile des crayons combustibles  $\text{UOx}$  et  $\text{MOx}$  est de 500 mm. Ils sont constitués d'un empilement de pastilles frittées de 8 mm de diamètre et de 12 mm de hauteur. Le plutonium des crayons  $\text{MOx}$  provient du retraitement du deuxième tiers du réacteur de la Centrale Nucléaire des Ardennes (Chooz A) en 1974 et l'uranium est naturel. La composition isotopique du plutonium à la date du 01/07/98 est indiquée dans le Tableau 5.11 :

Isotope i	$\frac{N_i}{\sum_i N_i} (\%)$
$^{238}\text{Pu}$	0,67
$^{239}\text{Pu}$	70,22
$^{240}\text{Pu}$	17,52
$^{241}\text{Pu}$	2,99
$^{242}\text{Pu}$	1,96
$^{241}\text{Am}$	6,64

Tableau 5.11 – Composition isotopique du plutonium des crayons MOx au 01/07/98

Le Tableau 5.12 montre le caractère épithermique du réseau R1MOX en prenant en compte le même découpage énergétique en quatre groupes.

N°	Macro-groupe	Proportion du flux dans le macro-groupe	R1MOX	R1UO2	REB
1	19,64 MeV - 0,9 MeV	$\frac{\phi_1}{\phi_{tot}} (\%)$	25,6	23,3	22,3
2	0,9 MeV - 5 keV	$\frac{\phi_2}{\phi_{tot}} (\%)$	39,6	36,5	37,0
3	5 keV - 0,625 eV	$\frac{\phi_3}{\phi_{tot}} (\%)$	27,7	25,8	26,2
4	0,625 eV - 0,011 meV	$\frac{\phi_4}{\phi_{tot}} (\%)$	7,1	14,4	14,6

Tableau 5.12 – Caractéristiques spectrales des configurations R1MOX, R1UO2 et REB dans MINERVE

La Figure 5.16 présente les spectres des différents réseaux MELODIE étudiés dans le cadre du programme CBU dans MINERVE et la Figure 5.17 le flux dans le réseau R1MOX calculé par le formulaire d'interprétation dédié PIMS [APPLI-29].

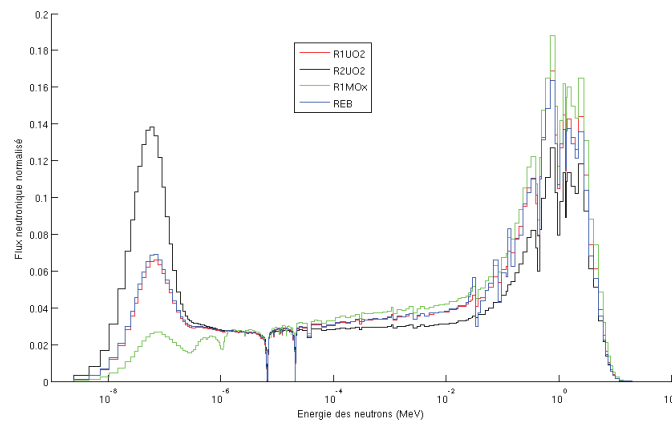


Figure 5.16 – Spectres neutroniques des différents réseaux considérés



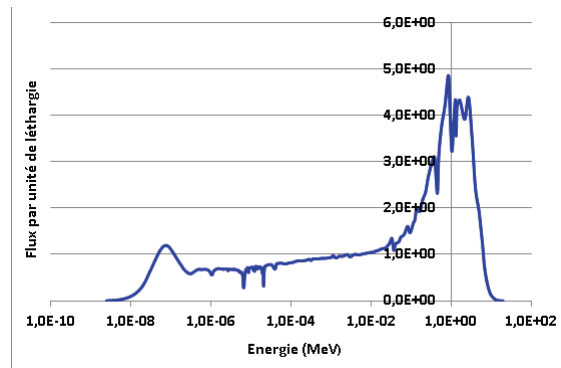


Figure 5.17 – Tracé du flux par unité de léthargie dans R1MOX avec PIMS

#### 5.4.2.4 Echantillons oscillés

Les échantillons de produits de fission oscillés n'ont pas tous le même support en raison des techniques de fabrication différentes :

- $\text{UO}_2$  fritté, représentatif des combustibles irradiés REP- $\text{UO}_x$  ;
- $\text{UO}_2$  compacté, utilisé pour les produits de fission platinoïdes difficilement frittibles que sont  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  et le  $^{133}\text{Cs}$ , volatile ;
- $\text{Al}_2\text{O}_3$  : support inerte permettant de conforter les résultats obtenus sur support  $\text{UO}_2$  compacté.

Les caractéristiques des échantillons, répartis en quatre lots distincts, sont présentées dans le Tableau 5.13 :

Lot	Isotope dopant	Gravure	Nature
<b>MINERVE1</b>	UO2	UF	fritté
	SmNAT	Sm	fritté
	<sup>147</sup> Sm	Sm7	fritté
	<sup>149</sup> Sm	Sm9	fritté
	<sup>152</sup> Sm	Sm2	fritté
	NdNAT	Nd	fritté
	<sup>143</sup> Nd	Nd3	fritté
	<sup>153</sup> Eu	Eu3	fritté
	<sup>155</sup> Gd	Gd5	fritté
	<sup>103</sup> Rh	Rh3	fritté
<b>MINERVE2</b>	<sup>145</sup> Nd	Nd5	fritté
	UO2	UC	compacté
	<sup>99</sup> Tc	Tc99	compacté
	<sup>95</sup> Mo	Mo5	compacté
	<sup>133</sup> Cs 0,5 g	Cs1	compacté
	<sup>133</sup> Cs 3 g	Cs6	compacté
<b>MINERVE3</b>	UNAT	UNC	compacté
	<sup>99</sup> Tc	Tc99C	compacté
	<sup>133</sup> Cs (1)	CsC1	compacté
	<sup>133</sup> Cs (2)	CsC2	compacté
	<sup>109</sup> Ag (1)	Ag9C1	compacté
	<sup>109</sup> Ag (2)	Ag9C2	compacté
	<sup>103</sup> Rh (1)	RhC1	compacté
	<sup>103</sup> Rh (2)	RhC2	compacté
<b>matrice alumine</b>	Al2O3	Apur	compaté
	Al2O3/Ag	AAG	compacté
	Al2O3/Ru	ARu	compacté
	Al2O3/Mo	AMo	compacté
	<sup>133</sup> Cs (1)	ACs1	compacté
	<sup>133</sup> Cs (2)	ACs2	compacté

Tableau 5.13 – Caractéristiques des lots d'échantillons d'oscillation MINERVE

Pour chaque échantillon, 13 pastilles ont été fabriquées, 10 formant la longueur active de l'échantillon (comprise entre 95 et 99 mm), les 3 dernières étant réservées aux analyses chimiques (caractérisation du produit de fission séparé majoritaire, des produits de fission résiduels et des impuretés). La hauteur fissile des échantillons étalons est également de l'ordre de 100 mm.

### 5.4.3 Interprétation des expériences d'oscillation de produits de fission séparés

Ce travail d'interprétation des expériences d'oscillation de produits de fission séparés dans le réseau R1MOX s'appuie sur le formulaire de calcul PIMS mettant en œuvre le code APOLLO-2.8 [APPLI-30] [APPLI-31] pouvant faire appel aux données issues des bibliothèques CEA2005V4.1.1 (basée sur l'évaluation de données nucléaires JEFF-3.1.1 [APPLI-32] [APPLI-33]).

#### 5.4.3.1 Présentation du formulaire dédié PIMS (Pile-oscillation Analysis Tool for the IMprovement of Cross Sections)

Développé au sein du SPRC/LEPh, à partir de 2007 et alimenté par des apports du SPRC/LPN et du SPEX/LPE, le formulaire de calcul PIMS (Pile-oscillation Analysis Tool for the IMprovement of Cross Sec-

tions), basé sur le code déterministe APOLLO2.8 intégrant la méthode des caractéristiques (solveur MOC), est dédié à l'interprétation et à la conception automatisées et validées d'expériences d'oscillation. Il se base sur les caractéristiques principales du schéma de calcul de référence SHEM-MOC recommandé pour les REL [APPLI-34] et un calcul de la réactivité par méthode perturbative (Théorie des Perturbations Exactes) (Figure 5.18). Fréquemment utilisée en physique, la théorie des perturbations a pour but de déterminer, suite à la modification du système étudié, l'impact de celle-ci sur ses grandeurs d'intérêt avec la plus grande précision possible en évitant de réaliser une simple soustraction entre les grandeurs résultant du calcul perturbé et du calcul non-perturbé. En neutronique, l'une des grandeurs d'intérêt les plus importante est le facteur de multiplication effectif,  $k_{\text{eff}}$ , et la théorie des perturbations a été tout d'abord mise au point dans l'optique d'évaluer la modification de  $k_{\text{eff}}$  suite à une perturbation du système [APPLI-35].

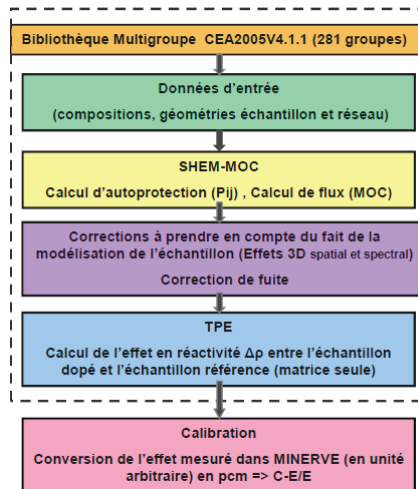


Figure 5.18 – Schéma de référence pour l'interprétation des expériences d'oscillation (PIMS)

Les objectifs principaux du formulaire PIMS sont :

- fiabiliser l'interprétation des expériences d'oscillation grâce à la définition d'un schéma et de méthodes de calcul de référence, validés par rapport à TRIPOLI4 ;
- qualifier et produire des évaluations de sections efficaces de réaction ;
- aider à la conception d'expériences d'oscillation ;
- pérenniser les résultats expérimentaux par le biais de la création d'une base de données technologiques propre à chaque campagne de mesures.

PIMS permet :

- le calcul des indices de spectre du réseau pour s'assurer du calcul du flux ;
- le calcul des corrections des effets 3D spatiaux (longueur d'échantillon) ;
- le calcul des corrections des effets 3D spectraux (« effet de bout ») par modèle SN-RZ ;
- le calcul automatique des incertitudes technologiques, sensibilités (1er ordre) aux données nucléaires pour la calibration. . . ;
- le calcul du coefficient de calibration.

### Principe général

La variation de réactivité induite par la comparaison de l'effet en réactivité de l'échantillon de référence à celui d'un échantillon contenant l'isotope séparé à étudier est calculée par méthode perturbative et comparée à l'effet déduit de la méthode directe (méthodes explicitées au paragraphe « Calcul de la réactivité »). Le formulaire assure l'enchaînement des différentes procédures de calcul faisant appels aux différents modules d'APOLLO2 et qui ont pour but :

- de créer les milieux associés aux matériaux constituant l'expérience à interpréter à partir des procédures archivant les données technologiques correspondantes ;
- de générer des géométries de type cellule, multicellule, RZ et MOC-2D pour les calculs d'autoprotection, de flux (direct et adjoint) et de correction d'effet 3D ;
- de rechercher automatiquement les isotopes et milieux à autoprotéger et de les hiérarchiser ;
- de réaliser les calculs d'autoprotection (en dessous de 22 eV, l'autoprotection des dopants est conseillée pour les échantillons les plus chargés ainsi que la protection mutuelle du dopant et des isotopes  $^{235+238}\text{U}$ . Le traitement de la protection mutuelle est réalisé avec le nouveau formalisme des mélanges implanté dans APOLLO2.8.), de flux et des corrections nécessaires à l'interprétation qui seront explicitées au paragraphe ;
- de fournir les résultats de calcul de flux, de taux de réaction et d'effets en réactivité par isotope et domaine d'énergie.

Les perturbations introduites par les différents échantillons d'oscillation étant relativement faibles et limitées à une zone d'étendue réduite, l'interprétation est limitée à une géométrie locale comprenant l'échantillon et son voisinage immédiat, de taille suffisamment importante pour que les conditions aux limites du réseau soient celles du mode fondamental. Ainsi, la géométrie 1/8ème d'assemblage utilisée par APOLLO2.8 et produite par le code SILENE [APPLI-36] pour la résolution de l'équation du transport par la méthode  $P_{ij}$  est constituée des neuf rangées de crayons (MOx puis UO<sub>2</sub>) du massif expérimental entourant l'échantillon central. Cette taille suffit pour que le spectre neutronique dans la cellule centrale d'oscillation soit respecté. Les cellules ayant un flux identique sont regroupées selon leur position dans le motif. Dans le cadre de calculs dans le réseau R1MOx, six regroupements sont utilisés différenciant l'échantillon, les crayons MOx environnants en 4 régions suivant leur teneur Pu et leur position par rapport à l'échantillon central ainsi que les crayons UO<sub>2</sub>. (Figures 5.19 et 5.20).

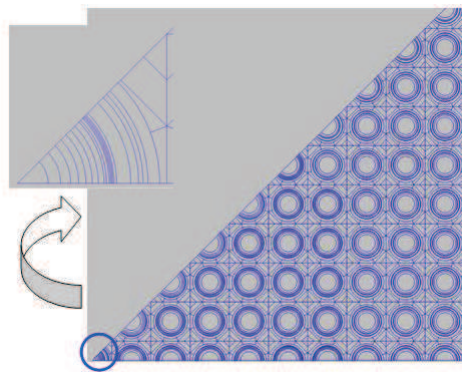


Figure 5.19 – Géométrie R1MOX MOC SILENE

Dans la cellule centrale est représenté l'échantillon entouré de la canne d'oscillation.

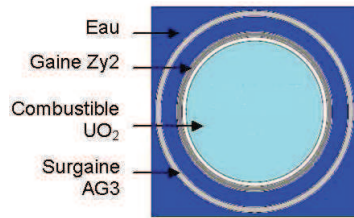


Figure 5.20 – Coupe cellule UO2 périphérique

Le maillage de chaque cellule est de type « moulin à vent » illustré Figure 5.21 : dans le modérateur, pas de couronnes, 8 secteurs et 4 angles.

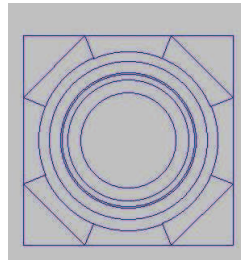


Figure 5.21 – Maillage de cellule de type « moulin à vent »

### Calcul de la réactivité

Les notations utilisées ci-après sont issues de la référence [APPLI-37]. Il existe deux approches pour exprimer la variation de réactivité due à la modification des caractéristiques d'un ou plusieurs milieux dans un réacteur :

- *La méthode des différences de valeurs propres ou méthode « directe »* : la variation de réactivité est alors égale à la différence des inverses des facteurs de multiplication effectifs  $k_1$  et  $k_2$  associés aux états 1 (référence) et 2 (perturbé) du réacteur. Ainsi, on a :

$$\Delta\rho = \rho_1 - \rho_2 = \frac{k_2 - k_1}{k_2 k_1}$$

Cette méthode nécessite cependant une bonne convergence sur les  $k_{\text{eff}}$  (Si  $\Delta\rho \approx 10^{-5}$ , la convergence doit être de l'ordre du 1/10 de pcm). Pour avoir une modélisation la plus proche possible de la réalité, on pourrait envisager de faire l'interprétation des mesures avec un code de calcul stochastique, en représentant la géométrie exacte du cœur complet à trois dimensions. Pour que l'incertitude statistique soit comparable à l'incertitude expérimentale sur la mesure de réactivité (soit 0,01 pcm), il faudrait simuler  $10^{14}$  histoires de neutrons pour chaque échantillon étudié. Le temps de calcul est donc rédhibitoire pour un calcul stochastique. La méthode de calcul utilisée sera donc déterministe. En outre, la méthode des perturbations permet de distinguer dans la variation de réactivité globale du système les différentes contributions (isotope, réaction, milieu, ...).

- *La méthode dite « perturbative » basée sur la Théorie des Perturbations Exactes (TPE).*

Avant de présenter la méthode proprement dite, intéressons-nous à la notion de flux adjoint qu'elle utilise.

### Notion de flux adjoint

La notion de flux adjoint intervient dans la formule des perturbations par le biais d'une fonction de pondération solution du problème adjoint au problème étudié. Ce flux adjoint quantifie l'importance neutro-nique.

#### Définition mathématique

Quelles que soient les approximations faites, le flux direct est solution d'une équation du type :

$$H\phi + S = \frac{1}{\nu} \frac{\partial \phi}{\partial t} \quad (5.10)$$

avec H opérateur de Boltzmann défini par

$$\begin{aligned} H\phi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) &= -\text{div} \left[ \vec{\Omega} \phi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \right] - \Sigma_t(\vec{r}, E, t) \phi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \\ &+ \int \int \Sigma_s(\vec{r}, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, E' \rightarrow E, t) \phi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) dE' d\Omega' \\ &+ \frac{1}{k_{eff}} P\phi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \end{aligned} \quad (5.11)$$

P opérateur de production :

$$P\phi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) = \frac{\chi(E)}{4\pi} \int \int \nu \Sigma_f(\vec{r}, E, t) \phi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) dE' d\Omega' \quad (5.12)$$

où  $\chi(E)$  est le spectre d'émission des neutrons par fission à l'énergie E,  $\nu$  le nombre moyen de neutrons produits par fission et S la source autonome. Si le réacteur est critique (flux indépendant du temps) et stationnaire (les calculs de neutronique sont faits en régime stationnaire), l'équation a une solution non triviale et définie à un facteur près. Cette solution est la fonction propre de H associée à la première valeur propre  $\mu_0$ . Or, un opérateur et son adjoint possèdent les mêmes valeurs propres donc on peut définir à un facteur multiplicatif près le flux adjoint par  $H^+ \phi^+ = 0$ .

#### Définition physique

Soit un neutron d'énergie  $E_0$  « lancé » au point  $\vec{r}_0$  dans la direction  $\vec{\Omega}_0$ . Au cours de son cheminement dans le réacteur, il va engendrer des fissions donnant naissance à de nouveaux neutrons qui auront eux aussi des descendants. Le flux observé dans le réacteur va donc évoluer au cours du temps mais, si celui-ci est exactement critique, le flux tendra asymptotiquement vers une fonction  $\varphi$  solution de  $H\varphi=0$  et donc proportionnelle à la solution  $\Phi$  de cette équation. Si, les fonctions ont été normalisées par  $\langle \phi^+, \phi \rangle = 1$ , on montre que le coefficient de proportionnalité est le flux adjoint  $\Phi^+$  au point du réacteur vierge où a été placé le neutron initial.  $\Phi^+$  mesure donc l'importance de ce point, c'est-à-dire, l'intensité du résultat finalement observé.

### Formule exacte des perturbations

Soit un réacteur initial indicé 1 et un réacteur perturbé indicé 2 appartenant à une famille de réacteurs fictifs associée au réacteur réel et dépendant d'un paramètre  $\lambda$  et définie par

$$H(\lambda) = \lambda P - K \quad (5.13)$$

avec P opérateur de production (nombre de neutrons émis par fission) et K regroupant les autres opérateurs. Dans chacun de ces réacteurs, le flux est respectivement donné par :

$$\begin{aligned}(\lambda_1 P_1 - K_1) \Psi_1 &= 0 \\ (\lambda_2 P_2 - K_2) \Psi_2 &= 0\end{aligned}\tag{5.14}$$

Les valeurs critiques de  $\lambda$  sont choisies pour que ces deux équations aient une solution pour laquelle flux direct et flux adjoint soient partout positifs. La différence de ces deux équations conduit à :

$$(\lambda_1 - \lambda_2) P_2 \Psi_2 + (\lambda_1 P_1 - K_1)(\Psi_1 - \Psi_2) + [\lambda_1 (P_2 - P_1) - (K_2 - K_1)] \Psi_2 = 0\tag{5.15}$$

En multipliant cette équation fonctionnelle scalairement par une fonction judicieusement choisie, qui fait disparaître le terme faisant intervenir une différence de flux, source d'imprécisions numériques sur les grandeurs calculées, on obtient l'équation scalaire :

$$\lambda_1 - \lambda_2 = \frac{\langle \Psi_1^+, [\lambda_1 (P_2 - P_1) - (K_2 - K_1)] \Psi_2 \rangle}{\langle \Psi_1^+, P_2 \Psi_2 \rangle}\tag{5.16}$$

car, par définition d'un opérateur adjoint :

$$\langle \Psi_1^+, (\lambda_1 P_1 - K_1)(\Psi_2 - \Psi_1) \rangle = \langle (\lambda_1 P_1^+ - K_1^+) \Psi_1^+, (\Psi_2 - \Psi_1) \rangle = 0\tag{5.17}$$

et, au signe près, on peut écrire l'écart entre les  $\lambda$  comme une différence de réactivité car, par définition  $\rho = \frac{k-1}{k} = 1 - \lambda$ . La formule (5.16) permet donc de calculer la différence entre les valeurs du paramètre critique sans risque d'imprécisions dues à des effets de différence entre des résultats calculés car les différences restantes ne portent que sur les données du calcul. La variation de réactivité s'exprime alors :

$$\Delta\rho = \rho_2 - \rho_1 = \frac{\langle \Psi_1^+, \left( \frac{\Delta P}{k_1} - \Delta K \right) \Psi_2 \rangle}{\langle \Psi_1^+, P_2 \Psi_2 \rangle}\tag{5.18}$$

avec :

- $\Psi_1^+$  : flux adjoint de l'état 1 (référence) ;
- $\Psi_2$  : flux direct de l'état 2 (perturbé) ;
- P : opérateur de production de l'équation de Boltzmann ;
- K : opérateur de disparition de l'équation de Boltzmann.

De par la nature des expériences d'oscillation, la perturbation est localisée au centre du réseau, l'intégration du numérateur se réduit donc uniquement à ce volume perturbé (noté E). De plus, cette perturbation ne modifiant pas de manière significative la production totale de neutrons dans le cœur, le dénominateur peut être considéré comme une constante, d'où l'expression :

$$\Delta\rho = \rho_2 - \rho_1 = \frac{\langle \Psi_1^+, \left( \frac{\Delta P}{k_1} - \Delta K \right) \Psi_2 \rangle_E}{I_f}\tag{5.19}$$

Cette formulation ne nécessite le calcul des flux directs et adjoints que dans le volume perturbé E. Elle permet également la projection de l'effet en réactivité sur chacune des sections efficaces de réaction et sur le maillage énergétique de calcul, donnant ainsi la possibilité d'une analyse fine des tendances dans la comparaison des résultats calcul/expérience.



### *Calcul de corrections*

Trois types de corrections à appliquer au résultat du calcul APOLLO2 ont été mis en évidence :

- la correction de longueur, liée à la courbure axiale du flux, non prise en compte par le calcul 2D ;
- la correction de bout, correspondant à un effet de modification du spectre aux extrémités de l'échantillon, car celui-ci est entouré d'aluminium, relativement transparent aux neutrons ;
- la correction de fuites.

### Calcul et correction de fuites

Le module CLIO : d'APOLLO2, utilisé pour le calcul de la variation de réactivité par la TPE, calcule les fuites par le formalisme B1 homogène en les modélisant par un terme supplémentaire de capture. Pour déterminer le coefficient de correction de fuite, comparons la variation de réactivité calculée par la TPE à celle calculée par le module CLIO :. La TPE permet d'écrire :

$$\Delta\rho = \frac{\langle \Psi_1^+, \Delta H \Psi_2 \rangle}{\langle \Psi_1^+, P_2 \Psi_2 \rangle} \quad (5.20)$$

avec  $H$  l'opérateur de Boltzmann. Nous avons vu précédemment que le terme de production se rapporte à une constante multiplicative qui sera notée  $1/A$ . Le terme de fuite s'exprime dans l'approximation de la diffusion par :

$$\Delta\rho_{fuites}/A = \iint \Phi_1^+ \delta(\text{div}(D\vec{\nabla})) \Phi_2 dV dE = \iint \Phi_1^+ \text{div}(\delta D \vec{\nabla} \Phi_2) dV dE \quad (5.21)$$

avec  $D$  : coefficient de diffusion.

Comme  $\Phi_1^+ \text{div}(\delta D \vec{\nabla} \Phi_2) = \text{div}(\Phi_1^+ \delta D \vec{\nabla} \Phi_2) - \delta D \vec{\nabla} \Phi_2 \vec{\nabla} \Phi_1^+$ , il vient :

$$\Delta\rho_{fuites}/A = \iint \text{div}(\Phi_1^+ \delta D \vec{\nabla} \Phi_2) dV dE - \iint \delta D \vec{\nabla} \Phi_2 \vec{\nabla} \Phi_1^+ dV dE \quad (5.22)$$

Le premier terme de cette expression peut se réécrire :

$$\iint \text{div}(\Phi_1^+ \delta D \vec{\nabla} \Phi_2) dV dE = \iint \Phi_1^+ \delta D \Phi_2 dS dE \quad (5.23)$$

où  $S$  est la surface du volume perturbé sur laquelle le terme  $\delta D$  s'annule. Il ne reste donc que le second terme. Dans l'approximation de la diffusion, le terme de variation de la réactivité due aux fuites dans le cadre de la TPE s'écrit donc :

$$\Delta\rho_{fuites,TPE} = -A \iint_{zp} \delta D_g \vec{\nabla} \Phi_{1,g}^+ \vec{\nabla} \Phi_{2,g} dV dE \quad (5.24)$$

avec  $\iint_{zp}$  l'intégrale sur le volume de la zone perturbée (échantillon).

Le calcul des fuites étant actuellement effectué dans le formalisme B1 homogène, le terme est homogène sur la géométrie.

En transformant l'intégrale continue en énergie en somme discrète sur les NG groupes du maillage énergétique et l'intégrale sur le volume en une somme sur celui des mailles de calcul, il vient alors :

$$\Delta\rho_{fuites,TPE} = -A \sum_{g=1}^{NG} \left( \delta D_g \sum_{i \in D} (\vec{\nabla} \Phi_{1,ig}^+ \vec{\nabla} \Phi_{2,ig}) \right) \quad (5.25)$$

La variation de réactivité due aux fuites calculée par CLIO : s'exprime par :

$$\Delta\rho_{fuites,CLIO} = -A \sum_{g=1}^{NG} \sum_{i \in D} (\Phi_{1,ig}^+ \delta D_g B^2 \Phi_{2,ig}) = -AB^2 \sum_{g=1}^{NG} \left( \delta D_g \sum_{i \in D} (\Phi_{1,ig}^+ \Phi_{2,ig}) \right) \quad (5.26)$$

Le produit  $DB^2$  représente la section artificielle de fuite modélisée par un terme supplémentaire d'absorption. Les deux expressions  $\Delta\rho_{fuites,TPE}$  et  $\Delta\rho_{fuites,CLIO}$  diffèrent par l'intégration spatiale du flux effectuée : dans l'expression de  $\Delta\rho_{fuites,CLIO}$ , on intègre le produit du flux adjoint du cas de référence par le flux direct du

cas perturbé tandis que dans celle de  $\Delta\rho_{fuites,TPE}$  apparaît le gradient de ces flux. On peut alors évaluer le facteur correctif à appliquer à la variation de réactivité due aux fuites calculée par le module CLIO : de la manière suivante :

$$C_{fuites} = \frac{\Delta\rho_{fuites,TPE}}{\Delta\rho_{fuites,CLIO}} = \frac{1}{B^2} \frac{\int_{zp} (\vec{\nabla}\Phi(\vec{r}))^2}{\int_{zp} (\Phi(\vec{r}))^2} \quad (5.27)$$

En coordonnées cylindriques, dans le cas d'une symétrie de révolution autour de l'axe, le gradient vaut :

$$(\vec{\nabla}\Phi(\vec{r}))^2 = B_r^2 J_1^2(B_r \rho) \cos^2(B_z z) + B_z^2 J_0^2(B_r \rho) \sin^2(B_z z) \quad (5.28)$$

d'où

$$C_{fuites} = \frac{1}{B^2} \frac{\int_0^r \int_{-L/2}^{L/2} [B_r^2 J_1^2(B_r \rho) \cos^2(B_z z) + B_z^2 J_0^2(B_r \rho) \sin^2(B_z z)] \rho d\rho dz}{\int_0^r \int_{-L/2}^{L/2} J_0^2(B_r \rho) \cos^2(B_z z) \rho d\rho dz} \quad (5.29)$$

$L$  étant la longueur de l'échantillon oscillé et  $r$  son rayon.

Les formules d'intégration des fonctions de Bessel donnant :  $\int J_0^2(x) x dx = \frac{1}{2} x^2 (J_0^2(x) + J_1^2(x))$  et  $\int J_1^2(x) x dx = \frac{1}{2} x^2 (J_1^2(x) + J_0(x) J_2(x))$ , on peut alors écrire l'expression suivante du coefficient de correction de fuites :

$$C_{fuites} = \frac{1}{B^2} \left( B_r^2 \frac{J_1^2(B_r r) + J_0(B_r r) J_2(B_r r)}{J_0^2(B_r r) + J_1^2(B_r r)} + B_z^2 \frac{B_z L - \sin(B_z L)}{B_z L + \sin(B_z L)} \right) \quad (5.30)$$

La correction de fuite consiste alors en :  $\Delta\rho_{fuites,corrig} = \Delta\rho_{fuites,CLIO} \times C_{fuites}$ . Pour les échantillons étudiés dans le cadre du programme CBU (longueur moyenne 10 cm et rayon moyen 4.1 mm), le coefficient de correction de fuite vaut  $C_{fuites} = 5.10^{-3}$ , indépendamment de l'échantillon considéré.

#### *Correction de longueur : effet 3D spatial*

APOLLO2 est un code 2D qui ne prend pas en considération les différentes longueurs d'échantillons. Il est donc nécessaire d'appliquer une correction à l'effet en réactivité pour que les échantillons correspondent tous à la même hauteur active. Tous les signaux sont rapportés à une longueur de référence (longueur  $L_R$ , volume  $V_R$ ) qui correspond à la longueur moyenne des échantillons. Lorsque l'échantillon étudié est plus grand (petit) que l'échantillon « moyen », la partie du signal calculé correspondant à l'excès (au déficit) de matière est retranchée (ajoutée) :  $\rho' = C_{LP}$ . Sous l'hypothèse que le mode fondamental est établi dans la zone expérimentale, le flux peut s'écrire :  $\psi(\vec{r}E) = \Phi(\vec{r})\phi(E)$ . Ce flux est solution de :  $D\Delta\psi + (P - A)\psi = 0$ . La zone est cylindrique, donc en théorie de la diffusion, la dépendance spatiale du flux peut s'écrire :

$$\Phi(r) = \Phi(\rho, z) \propto J_0(B_r \rho) \cos(B_z z) \quad (5.31)$$

A un facteur multiplicatif près, le flux adjoint peut s'exprimer sous la même forme. Pour déterminer le coefficient de correction de longueur, exprimons la variation de réactivité donnée par la théorie des perturbations exactes :

$$\Delta\rho_{TPE} = \frac{\langle \Psi_1^+, \Delta H \Psi_2 \rangle}{\langle \Psi_1^+, P_2 \Psi_2 \rangle} \quad (5.32)$$

En se plaçant dans le cas où l'on compare la réactivité des échantillons oscillés à des échantillons vides fictifs de même géométrie, on peut écrire :

$$\Delta\rho_{TPE} = \frac{\langle \Psi_0^+, H_2 \Psi_2 \rangle}{\langle \Psi_0^+, P_2 \Psi_2 \rangle} - \frac{\langle \Psi_0^+, H_1 \Psi_1 \rangle}{\langle \Psi_0^+, P_1 \Psi_1 \rangle} \quad (5.33)$$

Le terme de production se rapporte à une constante multiplicative qui sera notée  $1/A$ . D'où

$$\Delta\rho_{TPE} = A \langle \Psi_0^+, H_2 \Psi_2 \rangle - A \langle \Psi_0^+, H_1 \Psi_1 \rangle \quad (5.34)$$

car, l'intégrale de fission ne variant pas,  $A_{20} = A_{10} = A$ .

L'effet en réactivité provenant de la substitution d'un échantillon par un échantillon de longueur différente s'écrit :

$$\Delta\rho_{TPE}/A = \int \Psi_0^+ (D_2 \Delta - A_2 + P_2) \Psi_2 dV dE - \iint \Psi_0^+ (D_1 \Delta - A_1 + P_1) \Psi_1 dV dE \quad (5.35)$$

En développant cette expression, il vient :

$$\begin{aligned} \Delta\rho_{TPE}/A = & \iint \phi_0^+(E) (D_2 \Delta - A_2 + P_2) \phi_2(E) dE - \int \Phi_0^+(\vec{r}) \Phi_2(\vec{r}) d\vec{r} \\ & - \iint \phi_0^+(E) (D_1 \Delta - A_1 + P_1) \phi_1(E) dE - \int \Phi_0^+(\vec{r}) \Phi_1(\vec{r}) d\vec{r} \end{aligned} \quad (5.36)$$

Les intégrales en énergie sont supposées bien calculées par APOLLO2. En remplaçant dans cette dernière expression les flux directs et adjoints par leurs expressions, on peut séparer les intégrales radiales et axiales. Les intégrales radiales sont calculées par APOLLO2, la géométrie radiale de l'échantillon étant complètement décrite en 2D par contre les intégrales axiales ne le sont pas, d'où l'existence d'une correction à appliquer à la réactivité calculée. A un facteur près, les flux directs et adjoints sont égaux, il reste alors à calculer sur les différents domaines :

$$\Delta\rho_{TPE}/A = \Delta\rho_{20,AP2}/A \int_{L_2} \cos^2(B_z z) dz - \Delta\rho_{10,AP2}/A \int_{L_1} \cos^2(B_z z) dz \quad (5.37)$$

Lors de l'intégration sur  $dz$  apparaît un coefficient  $C_{Li}$  tel que :

$$C_{Li} = (B_z Li + \sin(B_z Li)) \quad (5.38)$$

L'expression de l'effet en réactivité prenant en compte la correction de longueur est alors :

$$\Delta\rho_{21,C_L} = \rho_{20,AP2} C_{L2} - \rho_{10,AP2} C_{L1} \quad (5.39)$$

Pour traduire la plus faible réactivité des échantillons à leurs extrémités, il faut prendre en compte la courbure axiale des flux directs et adjoints.

#### *Correction de bout : effet 3D spectral*

L'échantillon oscillé se trouve axialement entouré d'aluminium (sauf dans la campagne de 1993 où le train était constitué de tronçons UO2 enrichis à 3 %). Ce matériau étant transparent aux neutrons par rapport à l'échantillon, ceux-ci sont moins absorbés au voisinage des extrémités où le flux est alors beaucoup plus thermalisé. Le coefficient de correction de bout, appliqué à la variation de réactivité calculée dans l'hypothèse d'un échantillon infini axialement permet de tenir compte de ce phénomène. Pour calculer cette correction, on effectue avec APOLLO2 une modélisation RZ simplifiée de l'expérience. On cylindrise le volume que représente l'échantillon entouré de trois rangées de combustible (Figure 5.22).

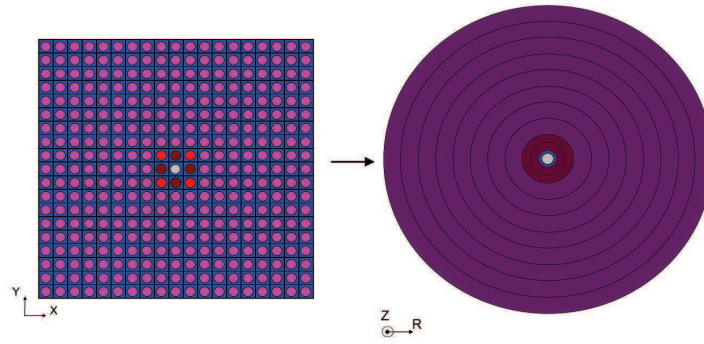


Figure 5.22 – Géométrie RZ équivalente à la géométrie multicellule XY

Radialement, le maillage représente (Figure 5.23) l'échantillon avec sa gaine et sa sur-gaine, l'eau entre la sur-gaine et la canne d'oscillation et la zone combustible homogénéisée. On utilise d'abord une représentation axialement hétérogène (Figure 5.24) permettant de corriger les effets de bout liés à la dimension finie de la zone perturbée. Pour reproduire une courbure radiale et axiale du flux conforme à celle du réseau réel, des conditions de réflexion de type albédo sont utilisées aux limites du domaine. Les effets de longueur liés à la courbure du flux sont ainsi pris en compte. La variation de réactivité entre l'état référence et l'état perturbé,  $\delta\rho_{21}^{RZhet}$ , est alors calculée. On utilise ensuite une représentation axialement homogène de la configuration pour normaliser ce résultat et s'affranchir des erreurs liées à l'homogénéisation des milieux environnants.



Figure 5.23 – Maillage de la géométrie RZ du dispositif d'oscillation

Par cohérence avec le calcul 2D XY, des conditions de réflexion axiale sont imposées aux frontières. Ainsi, la correction globale des effets 3D dus à l'hétérogénéité axiale de l'expérience et à la courbure spatiale du flux, établie pour chaque isotope s'exprime :

$$C_{3D} = \frac{\delta\rho_{21}^{RZhet}}{\rho_{21}^{RZhom}}$$

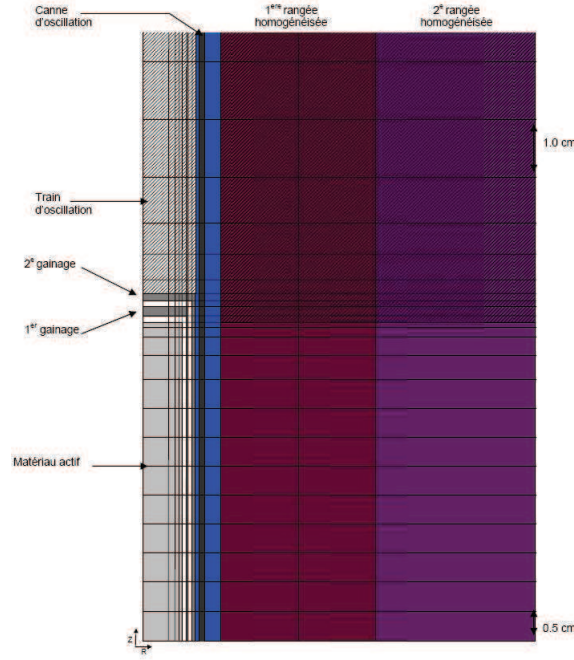


Figure 5.24 – Maillage de la géométrie RZ équivalente – géométrie axialement hétérogène

Deux calculs RZ sont alors comparés : l'un prenant en compte un échantillon de longueur 10 cm, l'autre un échantillon de hauteur égale à celle des crayons combustibles l'entourant. Les calculs sont effectués en SN de type  $S_2P_1$  à 281 groupes. Les flux, taux d'absorption, et les taux de production sur la hauteur de l'échantillon sont alors récupérés et la correction est calculée par :

$$C_{B1} = \frac{\sum_{z \text{ axiales } i} V_i \left[ \sum_{g'=1}^{NG} \chi_{g'} \Psi_{0,ig'} + \sum_{g=1}^{NG} \nu_1 \sigma_{f,1} \Psi_{0,ig} - \sum_{g'=1}^{NG} \Psi_{0,ig'} + \sum_{a,1} \Psi_{0,ig} \right]_{10cm}}{\sum_{z \text{ axiales } i} V_i \left[ \sum_{g'=1}^{NG} \chi_{g'} \Psi_{0,ig'} + \sum_{g=1}^{NG} \nu_1 \sigma_{f,1} \Psi_{0,ig} - \sum_{g'=1}^{NG} \Psi_{0,ig'} + \sum_{a,1} \Psi_{0,ig} \right]_{infini}}$$

Elle est normalisée de façon à ce que le produit  $\Psi^+ \Psi$  soit identique au centre de l'échantillon que l'échantillon ait une longueur de 10 cm ou infinie.

#### 5.4.3.2 Calibration

De par sa conception, sur une plage de fonctionnement donnée, l'angle de rotation du rotor de la barre de pilotage par rapport à son stator est proportionnel à la variation de réactivité qu'elle compense. Pour déterminer ce lien entre cette variation d'angle (notée  $\delta R$  et exprimée en unité pilote (up)) et la variation de réactivité (notée  $\Delta \rho$  et exprimée en pcm), on utilise une série d'échantillons contenant une quantité croissante d'un isotope de référence dont les données nucléaires sont considérées comme précisément connues. Le coefficient de proportionnalité entre le signal mesuré et la réactivité calculée est appelé « coefficient de calibration », noté  $\alpha$  et défini par :

$$R = \alpha \rho + \beta$$

En oscillant une série d'échantillons de caractéristiques très voisines et très bien maîtrisées en terme de dimensions, de masse et de bilan-matière, on s'affranchit de la constante  $\beta$ . Ainsi, la variation de signal  $\Delta R$  entre deux échantillons d'une même série peut être directement corrélée à la variation de réactivité  $\Delta \rho$  due à la variation de concentration de l'isotope étalon. Le calcul du coefficient de calibration dépend du spectre au niveau de l'échantillon et au niveau de la barre de pilotage. Dans le cadre du programme CBU mené dans

MINERVE, trois séries d'échantillons de différents enrichissements en  $^{235}\text{U}$  et différentes teneurs en bore ont été utilisées pour la calibration :

- enrichissement de 0,2% à 0,5% en  $^{235}\text{U}$  ;
- enrichissement de 0,25% en  $^{235}\text{U}$ , teneur en bore de 0 à 420 ppm ;
- enrichissement de 0,5% en  $^{235}\text{U}$ , teneur en bore de 0 à 2360 ppm.

L'intérêt de disposer de ces deux séries d'échantillons borés est de pouvoir comparer des coefficients de calibration déduits d'isotopes étalons différents. L' $^{235}\text{U}$  et le bore ayant des sensibilités différentes au spectre neutronique, cette comparaison permet une forme de validation du calcul de spectre neutronique au niveau du canal d'oscillation.

Les échantillons de calibration mettent en évidence la relation linéaire entre calcul et mesure sur la plage d'utilisation de MINERVE :

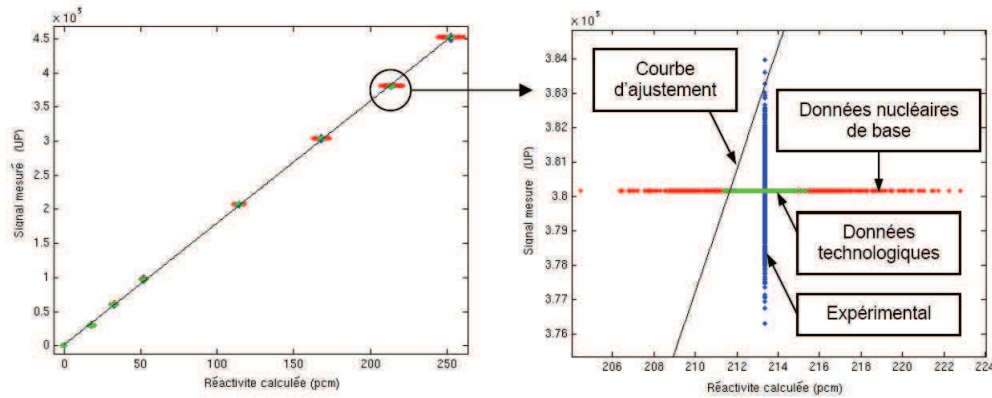
$$\alpha = \frac{\rho_m}{\rho_c}$$

avec

- $\alpha$  : coefficient de calibration
- $\rho_m$  : effet en réactivité mesuré (pcm)
- $\rho_c$  : effet en réactivité calculé (k<sub>up</sub>)

Le coefficient de calibration peut être obtenu par une moyenne pondérée en fonction de l'incertitude de mesure de l'effet en réactivité et de l'incertitude sur l'enrichissement en  $^{235}\text{U}$  et sur la teneur en bore à partir des échantillons étalons « fissiles » et « absorbants ». Il s'applique ensuite aux échantillons de produits de fission séparés afin de comparer les effets en réactivité calculés et mesurés. Le coefficient de calibration peut également être obtenu par méthode Monte Carlo. En effet, l'analyse des méthodes mises en œuvre par le passé pour établir la correspondance entre la grandeur mesurée et la grandeur calculée révèle un certain nombre de lacunes quant à l'identification et la propagation des incertitudes, notamment celles associées aux données nucléaires de base des isotopes étalons, ainsi que la prise en compte des corrélations entre les différents échantillons. Une méthode permettant de propager plus rigoureusement les différentes sources d'incertitude associées à la mesure et au calcul a donc été développée [APPLI-38]. Elle s'appuie sur une approche de type Monte Carlo qui consiste à estimer l'écart-type d'un ensemble d'estimations du coefficient  $\alpha$ , obtenues en réalisant des tirages aléatoires autour des valeurs de réactivité mesurées et calculées, et tenant compte des incertitudes associées à chacune de ces valeurs et de leurs corrélations entre les différents échantillons utilisés pour la calibration. Grâce à une analyse statistique de la population de coefficients  $\alpha$  issus de ces tirages, on peut déterminer un estimateur de moyenne et d'écart-type par catégorie d'incertitude traitée, et donc séparer les contributions d'incertitude à caractère corrélé entre les différentes mesures (incertitudes de données nucléaires de base) des contributions non-corrélées (incertitudes expérimentales et de données technologiques). C'est ce qu'illustre la Figure 5.25.





**Figure 5.25 – Principe d'ajustement tenant compte des différentes incertitudes pour l'étalonnage du signal expérimental**

Une fois les différentes sources d'incertitudes identifiées et quantifiées, un algorithme d'ajustement des réactivités mesurées  $R_k$  (l'indice  $k$  renvoyant à un échantillon particulier de la série constituée de  $n$  échantillons de calibration) en fonction des réactivités calculées  $\rho_k$ , et de la propagation des incertitudes associées, a été développé grâce au logiciel MATLAB. Le principe de la méthode est d'assimiler les réactivités  $\rho_k$  et  $R_k$  à deux vecteurs de  $n$  variables aléatoires, notés respectivement  $X = (X_k)_{k=1..n}$  et  $Y = (Y_k)_{k=1..n}$ , et de constituer des réalisations de ces variables par des tirages suivant des lois normales. Les moyennes  $\mu$  et écart-types  $\sigma$  sont définis par :

- moyenne  $\mu(X_k) = \rho_k$   $\mu(Y_k) = R_k$
- écart-type  $\sigma(X_k) = \sqrt{u_d^2(\rho_k) + u_t^2(\rho_k)}$

Pour une réalisation donnée  $X^*$  et  $Y^*$  des variables  $X$  et  $Y$ , le paramètre  $\alpha$  qui minimise la fonction  $f(\alpha, \beta) = Y^* - \alpha X^* - \beta$  est déterminé par une méthode des moindres carrés linéaire. La valeur obtenue est une première estimation du coefficient de calibration, notée  $\alpha^*$ . En reproduisant la démarche un nombre suffisant de fois pour obtenir une population statistiquement significative, on en déduit une moyenne et un écart-type associé à l'ensemble des  $\alpha^*$  obtenus. Les incertitudes expérimentales, technologiques et de données nucléaires de base étant totalement indépendantes, la mise en pratique de cette méthode est réalisée en trois étapes.

Les incertitudes sur la calibration des effets en réactivité se classent selon trois catégories :

- incertitudes de mesure : incertitude de répétabilité du signal et incertitude de reproductibilité du signal ;
- incertitudes technologiques liées à la fabrication des échantillons (dimensions, masse, bilan matière) ;
- incertitudes sur les données nucléaires de base (multiplicité neutronique, sections efficaces de capture, de fission et de diffusion). Celles-ci sont estimées à partir de la matrice BOLNA [APPLI-39] présentant les variances à 15 groupes d'énergie pour tous les isotopes neutroniquement significatifs (ici  $^{10}\text{B}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ), multipliée par des vecteurs de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  aux données nucléaires considérées, évalués grâce à des calculs déterministes APOLLO2.8-1.

#### 5.4.3.3 Comparaison calcul-expérience échantillons : impact des options du schéma d'interprétation

Les mesures réalisées sur six échantillons ne sont pas exploitables. Une forte surestimation est observée pour les échantillons Mo5 et Cs6. Cette surestimation pourrait provenir d'un problème de fuite de ces échantillons, qui conduirait à une diminution de la concentration du produit de fission et donc à une diminution en valeur absolue du signal expérimental. Ces deux échantillons ayant présenté des défauts d'étanchéité deux ans plus tard lors de la campagne REB, cette hypothèse est plausible. Concernant la forte surestimation du  $^{103}\text{Rh}$ , la remise en cause des analyses chimiques des échantillons rhodium a été évoquée lors de l'inter-

prétation de R1UO2 et R2UO2 [APPLI-40]. Concernant l'échantillon ARu fabriqué dans le but de qualifier l'effet en réactivité de l'isotope  $^{101}\text{Ru}$  aucune conclusion n'a pu être tirée des oscillations. En effet, dans cet échantillon, coexistent deux produits de fission majoritairement absorbants, le  $^{101}\text{Ru}$  et le  $^{99}\text{Ru}$ , responsables respectivement de 36,8% et 37,4% de l'absorption. Aucune tendance précise ne peut donc être donnée quant à la section de capture du  $^{101}\text{Ru}$ . Aucun échantillon de  $^{150}\text{Sm}$  n'a été fabriqué car l'essentiel de la capture de ces échantillons aurait risqué d'être dû au  $^{149}\text{Sm}$  résiduel, comme dans le cas de l'échantillon  $^{147}\text{Sm}$ , ce qu'illustre le Tableau 5.14. Aucune tendance n'a donc pu être obtenue sur l'empoisonnement individuel de cet isotope ni sur celui du  $^{151}\text{Sm}$  dont la demi-vie ( $T=91$  ans) est trop courte pour pouvoir obtenir cet isotope séparé.

Isotope	Section de capture (n, $\gamma$ ) (2200 $m.s^{-1}$ ) JEFF-3.1.1 (barn)
$^{150}\text{Sm}$	103
$^{151}\text{Sm}$	15128
$^{147}\text{Sm}$	57
$^{149}\text{Sm}$	41731
$^{99}\text{Ru}$	7
$^{101}\text{Ru}$	3

**Tableau 5.14 – Sections de capture dans le domaine thermique d'isotopes du Samarium et du Ruthénium JEFF-3.1.1**

Pour résumer, les échantillons non exploités dans le cadre de l'interprétation du programme CBU dans le réseau R1MOx sont regroupés dans le Tableau 5.15 :

Echantillon	Cause	Statut
<b>frittés</b>		
Rh103	remise en cause des analyses chimiques (mise en solution délicate)	écarté
Mo95	fuite possible	écarté
<b>compactés UO2</b>		
Cs1	fuite possible et charge Cs insuffisante	écarté
Cs6	fuite possible	écarté
<b>compactés alumine</b>		
RuNAT (pour $^{101}\text{Ru}$ )	mesure imprécise (concurrence entre $^{99}\text{Ru}$ et $^{101}\text{Ru}$ )	écarté
ACs2	forte incertitude sur le bilan-matière (teneur faible en dopant)	écarté

**Tableau 5.15 – Echantillons non exploitables**

Les écarts calcul-expérience présentés dans les paragraphes ci-après sont obtenus à partir des signaux expérimentaux S, des réactivités calculées et du coefficient de calibration de la manière suivante :

$$\frac{C - E}{E} = \alpha \frac{\rho_{c,matrice+dopant} - \rho_{c,matrice}}{S_{matrice+dopant} - S_{matrice}}$$

avec  $\alpha$  : coefficient de calibration.

### Impact du schéma de calcul

La méthode des caractéristiques (MOC), méthode aux ordonnées discrètes, permet le traitement de l'anisotropie de diffusion ainsi qu'une description hétérogène exacte de la géométrie considérée sans pour autant

nécessiter des temps de calculs excessifs. Le Tableau 5.16 présente l'impact du choix du solveur (MOC ou  $P_{ij}$ ) sur les écarts Calcul-Expérience.

Gravure	C/E $P_{ij}$ (%)	C/E MOC (%)	écart (%)
Sm	3,7	3,6	0,1
Sm9	0,0	-0,9	0,9
Sm7	8,3	7,1	1,2
Sm2	6,4	6,0	0,4
Nd	2,7	3,3	-0,6
Nd3	4,5	4,8	-0,3
Nd5	16,3	16,5	-0,2
Gd5	0,4	-0,2	0,6
Eu3	-4,5	-4,9	0,4
Tc99C	8,6	10,4	-1,8
CsC1	18,0	16,6	1,4
CsC2	-0,9	-2,7	1,8
RhC1	13,1	12,1	1,0
RhC2	14,3	10,8	3,5
Ag9C1	8,7	8,4	0,3
Ag9C2	-6,5	-8,4	1,9
AAg	16,7	17,1	-0,4
AMo	-0,2	-1,7	1,5
ACs1	16,2	14,7	1,5

Tableau 5.16 – Impact du choix du solveur - comparaison  $P_{ij}$  et MOC

La géométrie du réseau R1MOX ne présentant pas de fortes hétérogénéités, l'utilisation de la méthode des caractéristiques montre un effet mineur sur le calcul des effets en réactivité par rapport à la méthode des probabilités de première collision.

L'influence des paramètres de calcul du flux en MOC (paramètres de traçage des trajectoires) a ensuite été étudiée. Un premier calcul a été effectué avec des options « raffinées » et un second avec les options optimisées recommandées présentées dans le Tableau 5.17 :

Paramètre	Options raffinées	Options optimisées
$\Delta R$	0,05	0,1
N $\Phi$	36	24
N $\Psi$	3	2

Tableau 5.17 – Jeux de paramètres de traçage des caractéristiques

Gravure	C/E options raffinées (%)	C/E options optimisées	écart (%)
Sm	3,7	3,6	0,1
Sm9	-0,8	-0,9	0,1
Sm7	7,2	7,1	0,1
Sm2	6,1	6,0	0,1
Nd	3,4	3,3	0,1
Nd3	4,9	4,8	0,1
Nd5	16,6	16,5	0,1
Gd5	0,0	-0,2	0,2
Eu3	-4,9	-4,9	0,0
Tc99C	10,5	10,4	0,1
CsC1	16,7	16,6	0,1
CsC2	-2,8	-2,7	-0,1
RhC1	12,2	12,1	0,1
RhC2	10,8	10,8	0,0
Ag9C1	8,5	8,4	0,1
Ag9C2	-8,5	-8,4	-0,1
AAg	17,3	17,1	0,2
AMo	-1,5	-1,7	0,2
ACs1	14,7	14,7	0,0

**Tableau 5.18 – Influence des paramètres de calcul du flux en MOC (paramètres de traçage des trajectoires)**

On peut constater dans le Tableau 5.18 que les paramètres optimisés sont suffisamment précis pour traiter de façon réaliste notre problème. L'ensemble des résultats qui seront présentés dans les paragraphes suivants seront issus de calculs MOC.

### Influence de la calibration

Deux facteurs de calibration ont été évalués : un coefficient de calibration calculé uniquement à partir de l'échantillon boré U5 0,25% - B 420 ppm et un coefficient de calibration obtenu par une moyenne pondérée prenant en compte les deux séries d'échantillons borés. On obtient des écarts de 1 %.

Dans le but de vérifier la cohérence du coefficient de calibration calculé, la méthode de détermination Monte-Carlo prenant en compte les incertitudes technologiques (diamètre échantillon, diamètre gaine, teneur en dopant, enrichissement en  $^{235}\text{U}$ , teneur en  $^{10}\text{B}$ ), expérimentales et sur les données nucléaires a été utilisée en prenant en compte l'ensemble des séries d'échantillons. Le coefficient obtenu par la méthode Monte-Carlo est  $\alpha = 2,402 \pm 6,6\%$ . Celui obtenu par moyenne en ne prenant en considération que les échantillons borés U5 0,25 % - B 420 ppm et U5 0,25 % - B 0 ppm est de  $\alpha = 2,388 \pm 5\%$ .

### Influence de la méthode de calcul de la réactivité

Comme évoqué au paragraphe §3.2.1, PIMS permet de comparer la valeur de l'effet en réactivité obtenu par la méthode directe et la TPE. Le Tableau 5.19 présente l'écart obtenu sur la valeur des C/E entre ces deux méthodes de calcul. Pour l'ensemble des échantillons étudiés, l'écart en réactivité calculé est de  $\Delta\rho \approx 10^{-4}$  soit une dizaine de pcm et la convergence du calcul de l'ordre du pcm. Pour un grand nombre d'échantillons l'écart entre les deux méthodes est donc faible.

Gravure	C/E méthode directe (%)	C/E TPE	écart (%)
Sm	3,6	3,6	0,0
Sm9	-0,7	-0,9	0,2
Sm7	6,5	7,1	-0,6
Sm2	3,8	6,0	-2,2
Nd	-4,9	3,3	-8,2
Nd3	6,3	4,8	1,5
Nd5	18,0	16,5	1,5
Gd5	0,2	-0,2	0,4
Eu3	-4,9	-4,9	0,0
Tc99C	13,9	10,4	3,5
CsC1	16,1	16,6	-0,5
CsC2	-4,9	-2,7	-2,2
RhC1	16,8	12,1	4,7
RhC2	16,3	10,8	5,5
Ag9C1	8,6	8,4	0,2
Ag9C2	-10,1	-8,4	-1,7
AAg	20,7	17,1	3,6
AMo	-4,3	-1,7	-2,6
ACs1	11,8	14,7	-2,9

Tableau 5.19 – Influence du choix de la méthode de calcul de la réactivité

On constate en s'intéressant en particulier aux couples d'échantillons CsC1 (fortement dopé en  $^{133}\text{Cs}$ ) et CsC2 (faiblement dopé en  $^{133}\text{Cs}$  et d'effet en réactivité de l'ordre de 10 pcm) et RhC1 (fortement dopé en  $^{103}\text{Rh}$ ) et RhC2 (faiblement dopé en  $^{103}\text{Rh}$  et d'effet en réactivité de l'ordre de 10 pcm) que la méthode de calcul perturbative est beaucoup plus adaptée au calcul de petits effets en réactivité.

### Comparaison de bibliothèques (JEFF-3.1.1, JEF2.2, ENDF/B-VII.V0)

#### Comparaison JEF2.2 – JEFF3.1.1

Dans le but d'évaluer l'impact du passage de JEF2 à JEFF3.1.1, les calculs APOLLO2.8 ont été menés en utilisant les bibliothèques CEA93.281.V10.4 et CEA2005.281.V4.1.1 respectivement issues de ces deux évaluations de données nucléaires. Le bilan matière échantillon considéré est celui mis à jour, prenant en compte les impuretés introduites par le dopant. Le Tableau 5.20 est à mettre en regard du Tableau 1.3 présentant les modifications apportées aux données nucléaires des produits de fission du CBU REP-MOX dans l'évaluation JEFF-3.1.1 par rapport à JEF-2.2.

Gravure	C/E JEFF-3.1.1 (%)	C/E JEF-2.2	écart (%)
Sm	3,6	0,9	2,7
Sm9	-0,9	-3,6	2,7
Sm7	7,1	5,3	1,8
Sm2	6,0	5,2	0,8
Nd	3,3	0,6	2,7
Nd3	4,8	1,3	3,5
Nd5	16,5	15,7	0,8
Gd5	-0,2	-0,2	0,0
Eu3	-4,9	-7,1	2,2
Tc99C	10,4	4,5	5,9
CsC1	16,6	15,3	1,3
CsC2	-2,7	-3,1	0,4
RhC1	12,1	15,8	-3,7
RhC2	10,8	16,2	-5,4
Ag9C1	8,4	8,1	0,3
Ag9C2	-8,4	-8,7	0,3
AAg	17,1	16,9	0,2
AMo	-1,7	-2,8	1,1
ACs1	14,7	13,9	0,8

**Tableau 5.20 – Comparaison des écarts calcul expérience (C-E/E) échantillon JEF2.2 / JEFF-3.1.1-solveur MOC**

Les résultats obtenus sont conformes aux modifications apportées dans JEFF-3.1.1 par rapport à JEF-2.2 et conduisent en particulier à une amélioration de la prédiction de la capture du  $^{149}\text{Sm}$ , du  $^{153}\text{Eu}$  et du  $^{103}\text{Rh}$ .

*Comparaison JEFF3.1.1 – ENDF/BVII.V0*

Dans le but d'évaluer les performances de JEFF3.1.1 par rapport à l'évaluation américaine de données nucléaires ENDF, ENDF/B-VII.V0, les calculs APOLLO2.8 (méthode MOC) ont été menés en utilisant les bibliothèques CEA2005.281.V4.1.1 et CEA\_B7 V0.1 (281 groupes), respectivement issues de ces deux évaluations. L'isotope  $^{64}\text{Zn}$ , impureté présente dans les échantillons du lot 4 compactés à support UO<sub>2</sub> et alumine ne figure pas dans la bibliothèque CEA\_B7 V0.1 associée à ENDF-B-VII.V0. Les résultats sont présentés dans le Tableau 5.21.

Gravure	C/E JEFF-3.1.1 (%)	C/E ENDF/B-VII.V0	écart (%)
Sm	3,6	-2,3	5,9
Sm9	-0,9	-6,7	5,8
Sm7	7,1	2,4	4,7
Sm2	6,0	4,2	1,8
Nd	3,3	-3,0	6,3
Nd3	4,8	1,4	3,4
Nd5	16,5	26,4	-9,9
Gd5	-0,2	0,9	-1,1
Eu3	-4,9	-4,3	-0,6
Tc99C	10,4	16,7	-6,3
CsC1	16,6	15,9	0,7
CsC2	-2,7	-3,4	0,7
RhC1	12,1	11,7	0,4
RhC2	10,8	10,4	0,4
Ag9C1	8,4	10,2	-1,8
Ag9C2	-8,4	-4,3	-4,1
AAg	17,1	17,2	-0,1
AMo	-1,7	-1,6	-0,1
ACs1	14,7	14,0	0,7

**Tableau 5.21 – Comparaison des écarts calcul expérience (C-E/E) échantillon JEFF3.1.1 / ENDF/B-VII.V0 dans le réseau R1MOX**

Il apparaît que pour les échantillons Eu3, CsC1, CsC2, RhC1, RhC2, AAg, AMo et ACs1, les deux bibliothèques donnent des résultats dont les écarts sont inférieurs au %. Le  $^{149}\text{Sm}$  emportant 99% de l'effet en réactivité de l'échantillon Sm9, le  $^{155}\text{Gd}$  97% de celui de l'échantillon Gd5 et le  $^{143}\text{Nd}$  99% de celui de l'échantillon Nd3, on peut directement tirer des tendances sur le calcul de ces PF des C/E échantillon calculés. L'effet en réactivité du  $^{155}\text{Gd}$  est très bien calculé avec JEFF-3.1.1, de même que celui du  $^{149}\text{Sm}$  et du SmNAT. Le  $^{143}\text{Nd}$  en revanche semble mieux calculé avec ENDF/B-VII.V0. Le  $^{99}\text{Tc}$  est particulièrement surestimé par l'évaluation ENDF/B-VII.V0. Le Tableau 5.22 compare dans un premier temps les valeurs des sections efficaces de capture dans le domaine thermique et les intégrales de résonnance de chaque produit de fission considéré.



	$\sigma_c$ 2200 $m.s^{-1}$ (b)		
Produit de fission	ENDF/B-VII.V0	JEFF-3.1.1	écart (ENDF-JEFF-3)/JEFF-3(%)
<sup>143</sup> Nd	325	335	-2,9
<sup>145</sup> Nd	50	42	19,1
<sup>147</sup> Sm	57	57	-0,3
<sup>149</sup> Sm	40139	40145	0,0
<sup>152</sup> Sm	206	206	0,0
<sup>103</sup> Rh	145	143	1,5
<sup>155</sup> Gd	60887	60890	0,0
<sup>153</sup> Eu	312	313	-0,2
<sup>109</sup> Ag	91	91	0,4
<sup>99</sup> Tc	23	23	-0,1
<sup>133</sup> Cs	29	29	0,0
<sup>95</sup> Mo	14	14	-0,3
<sup>101</sup> Ru	5	3	66,7
<sup>99</sup> Ru	7	7	0,0
	Intégrale de Résonance (b)		
Produit de fission	ENDF/B-VII.V0	JEFF-3.1.1	écart (ENDF-JEFF-3)/JEFF-3(%)
<sup>143</sup> Nd	130	132	-1,4
<sup>145</sup> Nd	245	232	5,8
<sup>147</sup> Sm	775	794	-2,4
<sup>149</sup> Sm	3375	3484	-3,1
<sup>152</sup> Sm	2960	2991	-1,0
<sup>103</sup> Rh	1034	968	6,8
<sup>155</sup> Gd	1540	1550	-0,6
<sup>153</sup> Eu	1410	1410	0,0
<sup>109</sup> Ag	1473	1473	0,0
<sup>99</sup> Tc	362	324	11,8
<sup>133</sup> Cs	420	421	-0,1
<sup>95</sup> Mo	110	111	-0,6
<sup>101</sup> Ru	112	111	0,9
<sup>99</sup> Ru	170	162	4,9

Tableau 5.22 – Comparaison des sections de capture thermiques et des intégrales de résonance pour les produits de fission considérés JEFF3.1.1 / ENDF/B-VII.V0

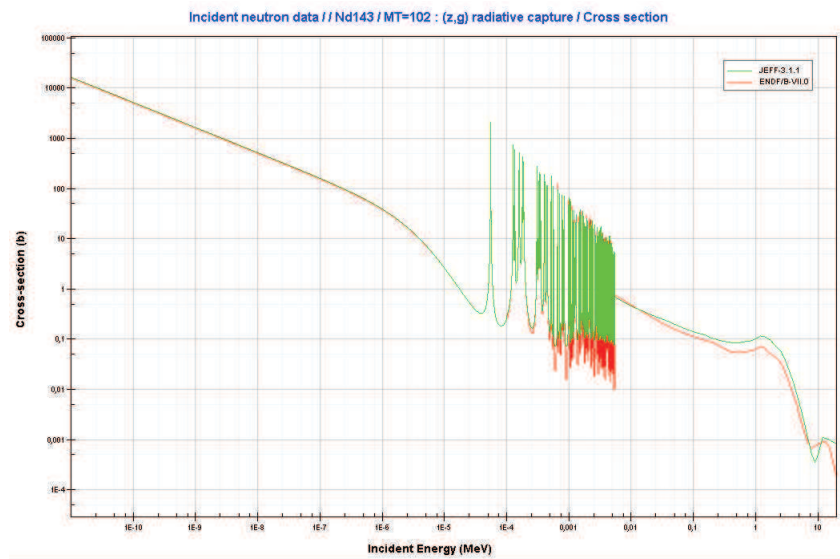


Figure 5.26 – Section efficace microscopique de capture du  $^{143}\text{Nd}$  en fonction de l'énergie, comparaison ENDF/B-VII.V0 / JEFF3.1.1

Dans le but de confirmer les tendances observées dans R1MOX, les mêmes calculs ont été réalisés dans le réseau R1UO2 du programme CBU constitué de crayons UO2 enrichis à 3% en  $^{235}\text{U}$  au pas de 1,26 cm et dont le spectre correspond à un spectre caractéristique des situations de stockage en piscine et de transport de combustibles irradiés d'un REP. Le Tableau 5.23 présente les écarts calcul-expérience des échantillons.

Gravure	C/E JEFF-3.1.1 (%)	C/E ENDF/B-VII.V0	écart (%)
Sm	-0,5	-6,3	5,8
Sm9	-0,7	-6,5	5,8
Sm7	7,7	3,0	4,7
Sm2	1,9	0,1	1,8
Nd	1,3	-2,1	0,8
Nd3	-2,7	-5,6	2,9
Nd5	1,7	12,1	-10,4
Gd5	-0,3	0,4	-0,7
Eu3	-8,9	-7,9	-1,0
Tc99C	9,7	17,5	-7,8
CsC1	14,9	14,9	0,0
CsC2	-5,8	-5,7	-0,1
RhC1	13,5	16,0	-2,5
Ag9C1	9,3	9,8	-0,5
Ag9C2	0,7	1,1	-0,4
AAg	5,1	5,5	-0,4
AMo	-5,1	-4,2	-0,9
ACs1	7,6	7,7	-0,1

Tableau 5.23 – Comparaison des écarts calcul expérience (C-E/E) échantillon JEFF3.1.1 / ENDF/B-VII.V0 dans le réseau R1UO2

Les résultats exposés montrent que JEFF-3.1.1 conduit à une meilleure prédiction de la perte de réactivité totale due aux isotopes dopants les plus antiréactifs par rapport à ENDF/B-VII.V0. Le Tableau 5.24 présente

les tendances obtenues pour les trois isotopes dopants des échantillons présentant un C/E mieux prédit avec ENDF/B-VII.V0 dans les réseaux R1MOX et R1UO2.

Isotope	R1MOX		R1UO2	
	C/E JEFF-3.1.1 (%)	C/E ENDF/B-VII.V0 (%)	C/E JEFF-3.1.1 (%)	C/E ENDF/B-VII.V0 (%)
<sup>147</sup> Sm	7,1 ± 8,7	2,4 ± 8,7	7,7 ± 9,6	3,0 ± 9,6
<sup>152</sup> Sm	6,0 ± 4,2	5,6 ± 4,8	1,9 ± 3,5	0,1 ± 3,5
<sup>143</sup> Nd	4,8 ± 4,2	1,4 ± 4,2	-2,7 ± 2,8	-5,6 ± 2,8

**Tableau 5.24 – Comparaison des écarts calcul-expérience isotope dopant seul dans R1MOX et R1UO2 avec JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.V0**

Le taux de capture du <sup>143</sup>Nd, poison majoritairement thermique apparaît sous-estimé dans le spectre le plus thermique (R1UO2) mais au contraire surestimé dans le spectre plus épithermique de R1MOX. La surestimation de la capture du <sup>147</sup>Sm et du <sup>152</sup>Sm semble due à une surestimation de leurs intégrales de résonance. Toutefois, la tendance obtenue sur le <sup>147</sup>Sm est entachée d’une incertitude élevée.

### Impact fuites

On constate dans le Tableau 5.25 que pour l’ensemble des échantillons (échantillons absorbants), l’influence du terme de fuite est faible. On ne constate pas d’amélioration notable de la prédiction de l’effet en réactivité de l’ensemble des échantillons.

Gravure	C/E avec prise en compte des fuites (%)	C/E sans prise en compte des fuites	écart (%)
Sm	3,6	3,6	0,0
Sm9	-0,9	-0,9	0,0
Sm7	7,1	7,1	0,0
Sm2	6,0	6,0	0,0
Nd	3,3	3,3	0,0
Nd3	4,8	4,8	0,0
Nd5	16,5	16,4	0,1
Gd5	-0,2	-0,2	0,0
Eu3	-4,9	-4,9	0,0
Tc99C	10,4	10,4	0,0
CsC1	16,6	16,7	-0,1
CsC2	-2,7	-2,6	-0,1
RhC1	12,1	12,2	-0,1
RhC2	10,8	10,9	-0,1
Ag9C1	8,4	8,4	0,0
Ag9C2	-8,4	-8,4	0,0
AAg	17,1	17,1	-0,0
AMo	-1,7	-1,4	-0,3
ACs1	14,7	14,9	-0,2

**Tableau 5.25 – Influence du terme de fuite**

### Influence correction 3D (effet spatial et spectral)

On constate globalement la prédominance de l’impact de la correction spatiale ou correction de longueur

sur la correction spectrale, comme le montre le Tableau 5.26. En particulier, pour les plus petits échantillons (échantillons à support UO<sub>2</sub> compacté du lot 4 et à support alumine de longueur moyenne 9.480 cm), cette correction majoritaire due à l'effet spatial atteint près de 5% entre les plus grands échantillons (Sm7 par exemple) et les plus petits (échantillons du lot 4).

Concernant l'effet spectral (dû à la constitution du train en rondins d'aluminium), prenons les exemples des couples d'échantillons CsC1 (fortement dopé en <sup>133</sup>Cs) et CsC2 (faiblement dopé en <sup>133</sup>Cs) et RhC1 (fortement dopé en <sup>103</sup>Rh) et RhC2 (faiblement dopé en <sup>103</sup>Rh), deux à deux de même longueur. Selon la teneur en dopant, on constate une variation du coefficient de correction, plus faible dans le cas d'un échantillon faiblement dopé. La nature du support influe également sur cet aspect. La correction varie ici de 0.3% à 2%.

Gravure	coefficient correction longueur	coefficient correction bout	impact correction longueur (effet spatial) (%)	impact correction bout (effet spectral) (%)
Sm	1,0208	0,9823	2,1	1,8
Sm9	1,0165	0,9866	1,7	1,3
Sm7	1,0216	0,9889	2,2	1,1
Sm2	1,0183	0,9932	1,8	0,7
Nd	1,0169	0,9835	1,7	1,7
Nd3	1,0132	0,9871	1,3	1,3
Nd5	1,0208	0,9862	2,1	1,4
Gd5	1,0200	0,9821	2,0	1,8
Eu3	1,0221	0,9870	2,2	1,3
Tc99C	0,9787	0,9940	-2,1	0,6
CsC1	0,9787	0,9949	-2,1	0,5
CsC2	0,9787	0,9945	-2,1	0,6
RhC1	0,9777	0,9987	-2,2	1,1
RhC2	0,9787	0,9807	-2,1	1,9
Ag9C1	0,9777	0,9971	-2,2	0,3
Ag9C2	0,9777	0,9975	-2,2	0,3
AAg	0,9797	0,9896	-0,0	1,0 %
AMo	0,9787	0,9826	-2,1	1,7
ACs1	0,9777	0,9938	-2,2	0,6

**Tableau 5.26 – Impact de la prise en compte de la correction des effets 3D**

La prise en compte de la correction des effets 3D spatiaux et spectraux conduit à l'amélioration nette de la prédiction de l'effet en réactivité des échantillons Tc99, CsC1, ACs1, RhC1, Ag9C1, AAg et AMo, échantillons de plus petite dimension pour lesquels la correction d'effet spatial est maximum.

#### **Influence du bilan matière échantillon**

Les masses de dopant et d'impuretés à prendre en compte pour chacun des échantillons y font l'objet de recommandations issues des pesées et des analyses chimiques (dont impuretés légères pour les échantillons du lot 4). En outre, pour obtenir des écarts calcul-expérience affinés, ces impuretés capturantes sont systématiquement prises en compte dans le bilan-matière de l'échantillon. Le Tableau 5.27 présente, pour chacun des échantillons, la contribution de chaque isotope pour 100 pcm d'antiréactivité obtenue grâce à la décomposition des effets en réactivité par isotope réalisée par le module perturbatif CLIO : et disponible dans le fichier de sortie du calcul PIMS. Les valeurs en gras indiquent les isotopes dopants, en rouge est identifié l'isotope de contribution majoritaire. On constate alors que le dopant majoritaire est le contributeur majeur de l'antiréactivité de l'échantillon dans tous les cas, hormis celui de l'échantillon Sm7 pour lequel la plus

	Echantillon																		
Isotope	Sm9	Sm7	Sm2	Sm	Nd3	Nd5	Nd	Gd5	Eu3	Tc99	CsC1	CsC2	Ag9C1	Ag9C2	RhC1	RhC2	Aag	Amo	ACs1
U235		0.3	0.3			2.7	3.9		0.2	3.4	0.8								
U238	0.1		-1.0			-7.9			-0.5	-12.5	-2.2	1.4	0.4	2.4	-0.4				
Sm149	99.7	57.3	20.2	95.5	2.2	10.4	0.2		0.1										
Sm152	0.2	0.9	79.0	3.7															
Sm147		41.3	0.5	0.7															
Sm148																			
Gd155			0.2					96.8											
Gd157		0.2	0.9		0.3	0.3	0.3	3.0											
Sm150				0.1															
Nd142					0.1														
Nd144					0.1		2.1												
Nd145					0.8		20.1												
Sm144					0.4														
Nd143					98.6	2.3	73.2												
Nd145						92.3													
Nd142							8.9												
Nd146							0.8												
Nd148							1.2												
Nd150							0.9												
Eu153								0.3	91.4										
Eu151									8.9										
Rh103															99.1	91.5			
H20										1.2	-4.2	-3.1	-1.4	-6.5	1.3	8.5	0.4	-0.4	-15.4
K41										0.2									
K39										3.9									
Tc99										103.8									
Cs133											105.7	101.8							115.8
N14													0.9	0.5					
Ag109													100.1	103.7			77.4		
Ag107													0.1				22.2		
Monat																		100.3	
Al27																		-1.4	
O16																		1.7	
CNAT																			-0.1
réactivité totale	-41.5221	-126.83	-55.506	-39.7	-33.07	-47.455	-42.24	-41.6	-74.56	-48.39	-47.33	-13.16	-56.746	-11.28	-46	-7.469	-66.3	-42.89	-49.35

Tableau 5.27 – Effet en réactivité des isotopes présents dans les échantillons, pour 100 pcm d'antiréactivité

grande part de l'antiréactivité est apportée par le  $^{149}\text{Sm}$  résiduel. On note également une part non négligeable de l'antiréactivité totale apportée par ce même  $^{149}\text{Sm}$  résiduel dans les échantillons Sm2 et Nd5. Dans l'étude qui suit, pour chaque échantillon, les concentrations de chaque impureté présente dans les différents échantillons ont été successivement augmentées de 10% (valeur de l'incertitude sur le dosage des impuretés). Il s'agit d'un cas « théorique » le plus pénalisant possible qui est présenté Tableau 5.28, les bilans matière des échantillons étant connus à  $\pm 6\%$  dans le cas le plus défavorable.

Gravure	C/E Bilan Matière référence (%)	C/E toutes impuretés + 10% (%)	écart (%)
Sm	3,6	-18,0	21,6
Sm9	-0,9	-21,5	20,6
Sm7	7,1	-11,2	18,3
Sm2	6,0	-14,4	20,4
Nd	3,3	-19,4	22,7
Nd3	4,8	-17,2	22,0
Nd5	16,5	-7,8	24,3
Gd5	-0,2	1,9	-2,1
Eu3	-4,9	-24,2	19,3
Tc99C	10,4	-15,7	26,1
CsC1	16,6	-22,0	38,6
CsC2	-27,8	-2,6	25,1
RhC1	12,1	-12,0	24,1
RhC2	10,8	1,2	9,6
Ag9C1	8,4	-19,1	27,5
Ag9C2	-8,4	-51,5	43,1
AAg	17,1	-10,2	27,3
AMo	-1,7	-51,6	49,9
ACs1	14,7	-4,9	19,6

Tableau 5.28 – Impact de la maîtrise du bilan matière des impuretés

La maîtrise du bilan matière des échantillons apparaît bien comme un point clé dans la réalisation des mesures.

*Impact de la présence d'eau dans les échantillons césium compactés*

Les échantillons dopés au césium ont une tendance particulière à capter l'humidité. Pour ces échantillons, la teneur résiduelle en eau retenue lors de la fabrication est celle mesurée sur l'échantillon non dopé de référence compacté UNC. Mais du fait de cette tendance, cette teneur est probablement sous-estimée. Par hypothèse la teneur en eau est proportionnelle à la quantité de césium dopant. La teneur considérée pour l'échantillon CsC2 moins dopé en césium est donc inférieure à celle de l'échantillon CsC1. Pour évaluer l'impact de la présence d'eau dans les échantillons césium sur UO<sub>2</sub> compacté du lot4 CsC2 et CsC1, un calcul avec augmentation de 10% du bilan matière a été effectué pour chacun d'eux. Le Tableau 5.29 présente la comparaison des écarts calcul-expérience obtenus :

Gravure	C/E BM H <sub>2</sub> O +10% (%)	C/E BM H <sub>2</sub> O ref (%)	écart C/E BM H <sub>2</sub> O +10% -BM H <sub>2</sub> O ref (%)
CsC1	13,8	16,6	-2,8
CsC2	-6,1	-2,7	-3,4
AsC1	11,3	14,7	-3,4

Tableau 5.29 – Impact de la présence d'eau dans les échantillons césium compactés

On constate que plus l'échantillon est faiblement dopé, plus la présence d'eau impacte son effet en réactivité.

### Impact de l'autoprotection des produits de fission

La géométrie d'autoprotection décrite dans le formulaire PIMS se décompose en cinq régions distinctes : l'échantillon, la cellule de combustible en face, en angle, la seconde rangée de crayons autour de l'échantillon et le reste du réseau.

Les produits de fission étant introduits en quantités bien supérieures dans les échantillons à ce qu'elles seraient dans un combustible irradié pour obtenir des effets en réactivité mesurables au cours des oscillations, l'effet d'autoprotection de ces isotopes n'est plus forcément négligeable [APPLI-41]. C'est le cas pour le  $^{95}\text{Mo}$ , le  $^{145}\text{Nd}$ , le  $^{133}\text{Cs}$ , dans une moindre mesure pour le  $^{99}\text{Tc}$  et le  $^{152}\text{Sm}$ . Le Tableau 5.30 présente une comparaison de calculs réalisés, pour des raisons de facilité dans le choix des isotopes à autoprotéger, avec un schéma d'interprétation simplifié basé sur APOLLO-2.8 (281 groupes – JEFF-3.1.1) se limitant à la description de sept rangées de crayons de massif autour de l'échantillon. Le calcul de flux  $y$  est réalisé avec des fuites volumiques imposées (égales à celles de la configuration sans échantillon) par la méthode  $P_{ij}$  avec un flux variant linéairement, en considérant la géométrie exacte de la cellule pour le calcul des probabilités de transmission et en utilisant si possible le formalisme flux/courant. L'autoprotection s'effectue sur une géométrie elle aussi simplifiée regroupant les cellules identiques à partir de la troisième rangée de crayons combustibles avec la procédure AUTOP\_SHEM\_S. En effet, les options sont les suivantes :

- *Mode paramétré* : les isotopes à autoprotéger sont sélectionnés en fonction de la contribution de leurs sections d'absorption au facteur de multiplication effectif du motif de calcul ;
- *Mode complet* : tous les isotopes de la géométrie de calcul sont autoprotégés ;
- *Mode rapide* : seuls les isotopes majeurs définis dans le schéma SHEM-MOC [APPLI-41] sont autoprotégés ;
- pas de prise en compte de l'autoprotection.

Gravure	Isotope	Concentration atomes $/ (10^{-24} \text{ cm}^3)$	C/E autop (%)	C/E non autop (%)	écart $\rho$ (NA-A) (pcm)	écart C/E (NA-A) (%)
<b>Sm2</b>	<sup>152</sup> Sm	4,48E-04	1,9	3,4	-1,9	1,5
<b>Mo5</b>	<sup>95</sup> Mo	4,47E-03	110,4	129	-3,4	18,3
<b>Tc99C</b>	<sup>99</sup> Tc	2,65E-03	11,6	15	-1	3,0
<b>Nd5</b>	<sup>145</sup> Nd	1,91E-03	24,3	39	-8,2	14,8
<b>ACs1</b>	<sup>133</sup> Cs	2,23E-03	8,7	22	-8,4	13,1

Tableau 5.30 – Impact de l'autoprotection – réseau R1MOX

Le Tableau 5.31 présente l'impact du choix des isotopes à autoprotéger sur la valeur des écarts C/E – 1 grâce à une comparaison des résultats obtenus avec d'une part le mode d'autoprotection paramétré et d'autre part le mode d'autoprotection rapide. On y constate également l'importance de l'autoprotection des isotopes précédemment identifiés.

Gravure	C/E autop mode paramétré (%)	C/E autop rapide (%)	écart (%)
Sm	3,6	3,6	0,0
Sm9	-0,9	-0,9	0,0
Sm7	10,6	17,3	-6,7
Sm2	6,0	7,7	-1,7
Nd	3,3	4,4	-1,1
<b>Nd3</b>	4,8	6,8	-2,0
Nd5	16,5	31,8	-15,3
Gd5	-0,2	-0,2	0,0
Eu3	-4,9	-4,4	-0,5
Tc99C	10,4	13,3	-2,9
CsC1	16,6	29,2	-12,6
<b>CsC2</b>	-2,7	-0,9	-1,8
RhC1	12,1	-12,2	-0,1
<b>RhC2</b>	10,8	10,6	0,2
Ag9C1	8,4	11,2	-2,8
<b>Ag9C2</b>	-8,4	-8,4	0,0
AAg	17,1	19,1	-2,0
AMo	-1,7	27,4	-29,1
ACs1	14,7	27,9	-13,2

Tableau 5.31 – Impact de la sélection des isotopes à autoprotéger – comparaison des modes d'autoprotection paramétré et rapide

L'influence de la prise en compte de l'autoprotection en dessous de 22 eV, domaine énergétique en maillage fin (non couvert par AUTOP\_SHEM) a été ensuite étudiée. Les résultats obtenus figurent dans le Tableau 5.32.



Gravure	C/E autop domaine SHEM (%)	C/E autop domaine entier (%)	écart (%)
Sm	3,6	3,6	0,0
Sm9	-0,9	-0,9	0,0
Sm7	10,6	7,1	3,5
Sm2	6,0	5,7	0,3
Nd	3,3	3,3	0,0
Nd3	4,8	4,8	0,0
Nd5	16,5	14,2	2,3
Gd5	-0,2	-0,2	0,0
Eu3	-4,9	-6,3	1,4
Tc99C	10,4	9,8	0,6
CsC1	16,6	16,1	0,5
CsC2	-2,7	-3,3	0,6
RhC1	12,1	-12,0	0,1
RhC2	10,8	10,8	0,0
Ag9C1	8,4	7,7	0,7
Ag9C2	-8,4	-9,5	1,1
AAg	17,1	16,3	0,8
AMo	-1,7	-1,7	0,0
ACs1	14,7	14,1	0,6

Tableau 5.32 – Influence de la prise en compte de l'autoprotection en dessous de 22 eV – réseau R1MOX

Il apparaît que les échantillons principalement impactés par cette restriction de l'autoprotection au domaine énergétique SHEM sont le Sm7 (surestimation de 3.4% du C/E), le Nd5 (surestimation de 2.3%) et l'Eu3 (surestimation de 1.4%, la résonance à 22.54 eV de l'<sup>153</sup>Eu étant principalement impactée). Pour confirmer les tendances obtenues dans R1MOX, les calculs ont été effectués dans R1UO2. Les Tableaux 5.33 et 5.34 en fournissent les résultats. On y constate que les tendances sont identiques.

Gravure	C/E autop domaine SHEM (%)	C/E autop domaine entier (%)	écart (%)
Sm	-0,5	-0,5	0,0
Sm9	-0,6	-0,7	-0,1
Sm7	9,7	7,7	-2,0
Sm2	2,1	1,9	-0,2
Nd	-1,2	-1,3	-0,1
Nd3	-2,7	-2,7	0,0
Nd5	3,1	1,7	-1,4
Gd5	-0,3	-0,3	0,0
Eu3	-8,0	-8,9	-0,9
Tc99C	10,2	9,7	-0,5
CsC1	15,3	14,9	-0,4
CsC2	-5,3	-5,8	-0,5
RhC1	13,6	13,5	-0,1
Ag9C1	8,4	7,7	0,7
Ag9C2	9,9	9,3	-0,6
AAg	5,8	5,1	-0,7
AMo	-5,1	-5,1	0,0
ACs1	8,0	7,6	-0,4

Tableau 5.33 – Influence de la prise en compte de l'autoprotection en dessous de 22 eV – réseau R1UO2

Gravure	Isotope	Concentration atomes $/ (10^{-24} \text{ cm}^3)$	C/E autop (%)	C/E non autop (%)	écart $\rho$ (NA-A) (pcm)	écart C/E (NA-A) (%)
Sm2	$^{152}\text{Sm}$	4,48E-04	7,2	8,0	-41,5	0,8
Mo5	$^{95}\text{Mo}$	4,47E-03	-4,5	53	-129	57,4
Tc99C	$^{99}\text{Tc}$	2,65E-03	5,5	7	-4	1,9
Nd5	$^{145}\text{Nd}$	1,91E-03	14,4	22	-63,3	7,6
ACs1	$^{133}\text{Cs}$	2,23E-03	-2,5	6	-88,8	8,3

Tableau 5.34 – Impact de l'autoprotection – réseau R1UO2

### Influence du nombre de couronnes dans l'échantillon

L'influence du nombre de couronnes au sein des échantillons a été évaluée par comparaison de calculs  $P_{ij}$  mettant en œuvre des géométries échantillons à 4, 6 et 8 couronnes. L'exemple traité concerne l'échantillon fritté Sm9. Par comparaison avec un calcul traitant un échantillon de référence (matrice UO2 seule) (calcul 4 couronnes de surfaces égales à 50%, 30%, 15% et 5% de la surface totale du matériau actif), on constate que le flux ne se creuse pas plus dans la pastille du fait de l'ajout de l'isotope dopant à la matrice UO2 (Figure 5.27).

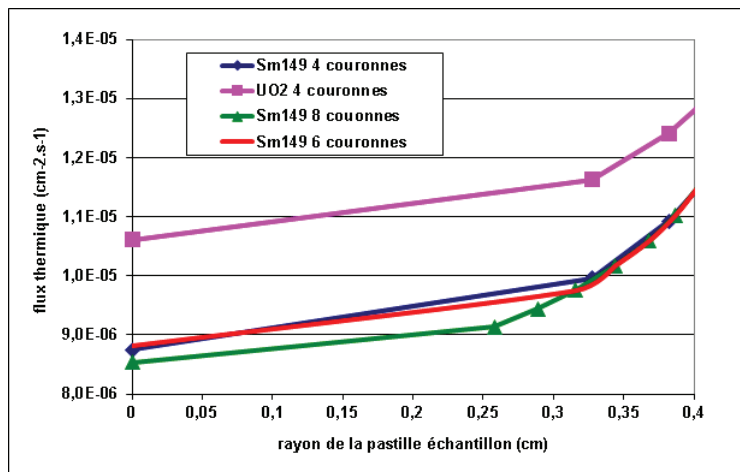


Figure 5.27 – Impact du nombre de couronnes dans l'échantillon sur le creusement du flux

Il n'est donc pas nécessaire de discrétiser plus l'échantillon. Une discrétisation en quatre couronnes avec raffinement vers l'extérieur de la pastille pour tenir compte de la forte variation de l'autoprotection en périphérie est suffisante pour traiter le problème.

### Temps de calcul

Le Tableau 5.35, donne un ordre de grandeur indicatif du temps de calcul nécessaire à l'obtention de l'effet en réactivité provoqué par les onze échantillons de calibration, les 4 échantillons référence et les 21 échantillons dopés calculés dans l'étude. Les résultats indiquent que la méthode  $P_{ij}$  est la plus rapide. Cependant, l'emploi de la méthode MOC conduit à un temps de calcul acceptable (machine Linux, 4 CPU, 3,20 GHz).

	Méthode $P_{ij}$	Méthode MOC
Temps de calcul (s)	9 h 45 min	17 h 36 min

Tableau 5.35 – Comparaison du temps de calcul méthode  $P_{ij}$  / méthode MOC

#### 5.4.3.4 Calcul des Incertitudes

Les sources principales d'incertitudes expérimentales résultent de la reproductibilité entre deux chargements dans le train haut d'un même échantillon ainsi qu'à la répétabilité des cycles d'oscillation pendant une même mesure, liée à la capacité de l'oscillateur à reproduire des oscillations identiques entre deux chargements (dates de mesure différentes). Concernant le problème de la reproductibilité, notons qu'entre deux chargements d'un échantillon, les différences qui apparaissent sont dues au positionnement de celui-ci dans la canne d'oscillation, engendrant une lame d'eau d'épaisseur différente qui ne perturbera pas exactement de la même manière le flux neutronique. L'incertitude majeure sur l'interprétation des mesures est, comme nous l'avons vu, liée au bilan-matière des échantillons oscillés (risques d'évaporation, de migration d'isotopes durant la fabrication faisant apparaître des inhomogénéités dans les pastilles, présence d'impuretés dans le dopant, impuretés dont la quantité peut être également inférieure au seuil de détection des appareils d'analyse). Les échantillons compactés, de part leur procédé de fabrication, présentent sur ce point des incertitudes moins élevées. S'ajoutent à elles les incertitudes liées à la calibration des signaux expérimentaux par les échantillons référence, somme quadratique des incertitudes sur les mesures de réactivité des échantillons UO2 à enrichissement croissant en  $^{235}\text{U}$  et UO2 borés, sur les masses en  $^{235}\text{U}$  ou en  $^{10}\text{B}$  qu'ils contiennent et sur la connaissance des sections efficaces de  $^{235}\text{U}$  et de  $^{10}\text{B}$  ( $\pm 0.5\%$ ), estimation à 2%, les incertitudes de calcul (convergence numérique sur le calcul du flux) ainsi que les incertitudes technologiques. Les incertitudes finales prennent donc en compte l'ensemble de ces incertitudes selon l'expression :

$$\frac{u(C/E)}{(C/E)} = \sqrt{\left(\frac{u(C)}{C}\right)^2 + \left(\frac{u(E)}{E}\right)^2 + \left(\frac{u_{tech}(\Delta\rho)}{\Delta\rho}\right)^2}$$

les incertitudes expérimentales se calculant grâce à :

$$\frac{u(E)}{E} = \sqrt{\frac{u^2(S_{ech}) + u^2(S_{ref})}{S_{ech} - S_{ref}}}$$

avec  $S_{ech}$  le signal de l'échantillon dopé et  $S_{ref}$  celui de l'échantillon de référence. Les incertitudes technologiques, calculées en appliquant une légère perturbation aux valeurs nominales grâce au formulaire PIMS, sont données par :

$$\frac{u_{tech}(\Delta\rho)}{\Delta\rho} = \sqrt{\left(\frac{\partial\Delta\rho}{\partial\mu}\right)^2 \frac{u^2(\mu)}{\mu^2} + \left(\frac{\partial\Delta\rho}{\partial d}\right)^2 \frac{u^2(d)}{d^2} + \left(\frac{\partial\Delta\rho}{\partial m}\right)^2 \frac{u^2(m)}{m^2} + \left(\frac{\partial\Delta\rho}{\partial d_g}\right)^2 \frac{u^2(d_g)}{d_g^2}}$$

avec

- $\mu$  la concentration de l'isotope dopant ;
- $d$  le diamètre de l'échantillon ;
- $m$  la masse de l'échantillon ;
- $d_g$  le diamètre de la gaine de l'échantillon.

Le Tableau 5.36 présente cette décomposition des incertitudes à  $2\sigma$  pour les réseaux R1MOX et R1UO2.

On y remarque que les incertitudes expérimentales relatives à l'oscillation des échantillons dans le réseau R1MOX sont globalement plus élevées que celles associées aux mesures effectuées dans R1UO2. Ceci s'explique par un nombre plus faible de mesures pour chaque échantillon lors de la campagne R1MOX (3 ou 4 contre 5 pour la campagne R1UO2) et par une dispersion plus forte de ces mesures entre deux chargements du même échantillon dans la canne d'oscillation. De plus, on constate également que la faible teneur en dopant de l'échantillon conduit à une incertitude expérimentale plus forte que pour une teneur plus élevée du fait de la diminution du signal mesuré qui augmente l'incertitude relative sur leur mesure. Les échantillons CsC2 et Ag9C2 illustrent ce phénomène par comparaison respective avec CsC1 et Ag9C1.

Echantillon	Bilan	EXP (signal dopant) (%)		Technologiques (%)		Incertitude totale (%)	
	Matière (%)	R1MOX	R1UO2	R1MOX	R1UO2	R1MOX	R1UO2
Sm	1,9	3,5	1,1	2,3	1,8	4,6	4,8
Sm9	1,7	1,9	1,1	2,0	1,7	3,2	4,5
Sm7	6,0	0,8	0,9	1,4	1,2	6,2	8,1
Sm2	2,6	3,2	1,1	1,5	1,4	4,4	5,1
Nd	1,9	4,5	1,2	2,0	1,9	5,3	5,0
Nd3	1,8	2,5	1,2	2,2	1,9	3,8	4,9
Nd5	3,0	2,4	1,3	2,0	1,7	4,3	6,0
Gd5	1,7	2,4	1,2	2,2	1,6	3,7	4,5
Eu3	2,0	1,3	1,3	1,8	1,7	3,0	5,0
Tc99C	1,8	2,4	2,5	2,2	2,1	3,7	6,4
CsC1	3,6	2,6	4,0	2,1	2,0	4,9	9,6
CsC2	4,0	7,2	5,8	4,5	3,0	9,4	12,8
RhC1	2,1	2,6	1,9	2,3	2,1	4,1	6,1
Ag9C1	1,9	2,0	4,0	2,0	1,9	3,4	7,8
Ag9C2	2,1	8,6	10,1	3,7	3,4	9,6	15,6
AAG	2,0	1,6	1,3	3,3	3,1	4,2	6,4
AMo	1,6	2,0	1,5	2,2	2,4	3,4	5,5
ACs1	3,6	2,0	1,0	3,1	2,8	5,2	7,4

Tableau 5.36 – Décomposition des incertitudes à  $2\sigma$  pour les oscillations dans les réseaux R1MOX et R1UO2 du programme CBU

#### 5.4.3.5 Ecarts calcul-expérience par produit de fission

Les écarts calcul/expérience calculés tiennent compte de la répartition isotopique des taux de capture dans les échantillons issue du calcul PIMS (voir Tableau 5.27). Pour l'ensemble des échantillons étudiés, le dopant majoritaire emporte la quasi-totalité de l'antiréactivité. Les écarts C/E reflétant l'effet de capture de l'isotope dopant obtenus à partir des résultats JEFF-3.1.1 MOC du Tableau 5.16 dans R1MOX sont présentés dans le Tableau 5.37 en comparaison avec ceux obtenus dans le réseau R1UO2. Lorsqu'un même produit de fission est contenu dans plusieurs échantillons, le C/E présenté est issu d'une moyenne pondérée les prenant tous en considération.

Isotope	R1MOX	R1UO2
$^{149}\text{Sm}$	$-0,9 \pm 3,7$	$-0,7 \pm 2,7$
$^{147}\text{Sm}$	$13,1 \pm 8,7$	$29,2 \pm 9,6$
$^{152}\text{Sm}$	$6,8 \pm 4,8$	$2,8 \pm 3,5$
$^{\text{nat}}\text{Sm}$	$3,6 \pm 4,6$	$-0,5 \pm 2,8$
$^{143}\text{Nd}$	$4,8 \pm 4,2$	$-2,8 \pm 2,8$
$^{145}\text{Nd}$	$17,7 \pm 4,1$	$2,2 \pm 3,1$
$^{\text{nat}}\text{Nd}$	$3,6 \pm 5,8$	$-1,4 \pm 3,0$
$^{\text{nat}}\text{Nd}$	$10,0 \pm 7,5$	$6,5 \pm 5,0$
$^{109}\text{Ag}$	$4,6 \pm 4,5$	$3,9 \pm 4,2$
$^{\text{nat}}\text{Ag}$	$17,1 \pm 4,5$	$5,1 \pm 3,9$
$^{\text{nat}}\text{Mo}$	$-1,6 \pm 4,0$	$-5,1 \pm 3,4$
$^{\text{nat}}\text{Ru}$	$34,7 \pm 5,0$	$20,3 \pm 4,2$
$^{153}\text{Eu}$	$-4,5 \pm 3,5$	$-7,9 \pm 2,8$
$^{99}\text{Tc}$	$10,9 \pm 4,1$	$10,1 \pm 3,8$
$^{155}\text{Gd}$	$-0,2 \pm 4,0$	$-0,3 \pm 2,6$
$^{103}\text{Rh}$	$12,0 \pm 4,0$	$13,5 \pm 3,3$

**Tableau 5.37 – Ecarts C/E- $1 \pm 2\sigma$  (%) par produit de fission dans les réseaux R1MOX et R1UO2-calculs effectués avec l'évaluation JEFF-3.1.1**

Détaillons à présent les tendances observées :

#### Isotopes du samarium

La capture du  $^{149}\text{Sm}$  est correctement prédite tout comme celle du  $^{\text{nat}}\text{Sm}$  dont le  $^{149}\text{Sm}$  est à l'origine de 95% de la capture. On observe une surestimation de l'effet de l'échantillon de  $^{147}\text{Sm}$ . Concernant cet échantillon, il est difficile de tirer des conclusions de cette mesure car l'isotope  $^{147}\text{Sm}$  ne représente que 41% de l'absorption de l'échantillon Sm7, fabriqué spécialement pour qualifier la section efficace de capture de l'isotope  $^{147}\text{Sm}$ . En effet, 58% de l'absorption PF de l'échantillon Sm7 sont dus à la présence résiduelle de l'isotope  $^{149}\text{Sm}$  provenant de la séparation de l'isotope  $^{147}\text{Sm}$  lors de la fabrication de l'échantillon. En retirant cet effet en réactivité du  $^{149}\text{Sm}$ , on constate une surestimation de l'effet du  $^{147}\text{Sm}$  seul de 13%. Notons que cette surestimation est encore plus forte dans le réseau R1UO2 (29%) du fait d'un spectre encore plus thermique. Cependant puisque l'incertitude atteint 9% sur ce résultat, on ne peut conclure à une réelle tendance.

Concernant l'échantillon dopé au  $^{152}\text{Sm}$ , on constate que sa surestimation augmente avec la dureté du spectre. Notons que, dans cet échantillon, la présence de traces de  $^{149}\text{Sm}$  emporte 20% de l'effet en réactivité total dans le réseau R1MOX et jusqu'à 30% de celui-ci dans R1UO2. Pour supprimer l'influence de cette composante, il pourrait être envisagé soit de fabriquer de nouveaux échantillons dopés  $^{147}\text{Sm}$  et  $^{152}\text{Sm}$  avec un

contrôle encore plus poussé de la teneur en impuretés, soit d'osciller les échantillons actuels dans un spectre uniquement épithermique, la composante thermique étant supprimée par exemple par l'utilisation d'un filtre cadmium.

### Isotopes du néodyme

Le taux de capture du  $^{143}\text{Nd}$ , absorbant essentiellement thermique, semble sous-estimé dans la configuration thermique R1UO2 ( $-2,8 \pm 2,8\%$  à  $2\sigma$  et surestimé en spectre épithermique ( $4,8 \pm 4,2\%$  à  $2\sigma$ ). On remarque une forte surestimation du  $^{145}\text{Nd}$  de ( $17,7 \pm 4,1\%$ ) dans R1MOX non observée dans le réseau R1UO2. Le  $^{145}\text{Nd}$  étant un absorbant résonnant sa contribution à l'antiréactivité est fortement liée à la nature du spectre dans lequel est oscillé l'échantillon. Le dernier échantillon contenant du néodyme est l'échantillon dopé au néodyme naturel et composé de 12% de  $^{143}\text{Nd}$  et de 8% de  $^{145}\text{Nd}$ . Dans R1MOX, le  $^{143}\text{Nd}$  est à l'origine de 73% de l'effet en réactivité total de l'échantillon (80% dans R1UO2) et le  $^{145}\text{Nd}$  de 20% de cet effet (13% dans R1UO2). Dans les deux réseaux, le  $^{142}\text{Nd}$ , qui n'a pas été oscillé en tant qu'isotope séparé, emporte quant à lui 10% de l'effet en réactivité total.

### Argent 109

L'effet en réactivité de  $^{109}\text{Ag}$  est bien calculé dans les deux réseaux. L'échantillon AAg dopé d'argent naturel contient 52% d' $^{109}\text{Ag}$  et 48% d' $^{107}\text{Ag}$ . Or, la section efficace de capture thermique de  $^{109}\text{Ag}$  étant de 91 barns contre 38 barns pour  $^{107}\text{Ag}$ ,  $^{109}\text{Ag}$  est à l'origine de 80% de l'effet en réactivité total de l'échantillon d'argent naturel (Tableau 5.27). Le C/E de  $^{109}\text{Ag}$  dans R1UO2 est cohérent avec la tendance observée pour  $^{109}\text{Ag}$ . En revanche, dans le spectre épithermique du réseau R1MOX, l'effet de  $^{109}\text{Ag}$  apparaît nettement surestimé.

### Césium 133

Aussi bien dans R1MOX que dans R1UO2, la capture du  $^{133}\text{Cs}$  est surestimée. L'écart C/E augmente avec la dureté du spectre, ce qui indique une possible tendance à la surestimation de la capture résonnante (jusqu'à  $+10\% \pm 7,5\%$ ).

### Molybdène 95

Le taux de fuite de l'échantillon Mo5 dans R1MOX est très élevé. Cependant, il a été oscillé dans R1UO2 et a montré une bonne prédiction de l'effet en réactivité de son dopant  $^{95}\text{Mo}$  avec un C/E de ( $-0,1 \pm 3,6\%$ ) à  $2\sigma$ . Seul l'échantillon AMo a été oscillé dans ces deux réseaux et l'effet du molybdène naturel dopant y apparaît comme sous-estimé, le  $^{95}\text{Mo}$  emportant environ 60% de l'effet en réactivité dans R1MOX. Cela semble indiquer un effet non négligeable des autres isotopes constituant le molybdène naturel présents, c'est-à-dire principalement le  $^{96}\text{Mo}$ , le  $^{97}\text{Mo}$  et le  $^{98}\text{Mo}$ , dont il faudrait fabriquer des échantillons dopés pour mieux étudier les écarts observés.

### Ruthénium

Aucune tendance ne peut être dégagée quant à l'effet en réactivité du  $^{101}\text{Ru}$  bien que l'effet du ruthénium naturel apparaisse comme nettement surestimé dans les deux réseaux avec une augmentation de cette surestimation avec la dureté du spectre.

### Europium 153

On constate la sous-estimation du taux de capture du  $^{153}\text{Eu}$  dans les deux réseaux étudiés ( $-4,5\% \pm 3,5\%$  dans R1MOX) qui augmente en fonction de la dureté du spectre. Dans l'échantillon Eu3 oscillé, le  $^{153}\text{Eu}$  emporte 90% de l'effet en réactivité aussi bien dans R1MOX que dans R1UO2, le reste étant dû à la présence de  $^{151}\text{Eu}$ .

### Technétium 99

La capture du  $^{99}\text{Tc}$  est nettement surestimée aussi bien dans R1MOX ( $10,9\% \pm 4,1\%$ ) que dans R1UO2 de 10% avec un léger accroissement de cette surestimation avec la dureté du spectre.

### Gadolinium 155

Concernant le  $^{155}\text{Gd}$ , on note une prédiction satisfaisante de sa capture aussi bien dans R1MOX que dans R1UO2.

### Rhodium 103

On observe une surestimation de la capture résonnante du  $^{103}\text{Rh}$  dans R1MOX et R1UO2 de l'ordre de 12%. Cette constatation est en désaccord avec les mesures microscopiques de l'IRMM [APPLI-42] confirmant les données présentes dans JEFF-3.1.1. Une partie de l'écart C/E obtenu pourrait être lié aux caractéristiques des échantillons et en particulier de leur granulométrie. Il a donc été envisagé soit de fabriquer de nouveaux échantillons dopés au  $^{103}\text{Rh}$ , soit de réaliser une analyse de la microstructure de ceux déjà à disposition. Une nouvelle mesure est alors réalisée au cours du programme MAESTRO, à l'aide d'un échantillon sous forme de fil de matériau pur, ce qui permet de s'affranchir du problème de double hétérogénéité [APPLI-43].

Le programme expérimental MAESTRO (Matériaux et Eléments de STRuctures étudiés par Oscillation) composé de trois phases s'étalant sur la période 2011-2013 a pour objectif d'étendre la qualification de la bibliothèque de données nucléaires JEFF-3.1.1 aux matériaux de structure (Mg, Al, Si, Cl, Ca, Ti, Cr, Fe, Ni, Cu, Zn, Zr, Sn), de modulation ( $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{D}_2\text{O}$ , Be, C,  $\text{CH}_2$ ) et de détection (V, Mn, Co, Nb, Rh), aux absorbants neutroniques (Ag, In, Cd, Gd, Dy, Er, Eu, Hf, Cs,  $^{107}\text{Ag}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ) ainsi qu'aux alliages industriels (Zy4, M5, acier 304L et 316L, Inconel 718, béton). La réalisation de sa première phase au 1er semestre 2011 comporte des mesures par oscillation et activation de quatre matériaux jugés prioritaires pour l'instrumentation des réacteurs génération III+ à eau pressurisée (EPR) et pour la problématique de perte de réactivité par cycle : Co, V, Mn et Rh dans le réseau R1UO2 du réacteur MINERVE. Les échantillons de calibration utilisés sont des échantillons liquides (solutions étalonnées de  $^6\text{Li}$ , de  $^{10}\text{B}$ , de  $^{\text{nat}}\text{Gd}$ ) et des fils d'or. Ces mesures ont été interprétées en 2012 au SPRC/LEPh et en particulier celles relatives au  $^{103}\text{Rh}$ . C'est à cette nouvelle mesure du  $^{103}\text{Rh}$  que nous allons à présent nous intéresser plus en détail. L'échantillon utilisé est constitué d'une tige de Rhodium pur de 99 mm de longueur, insérée dans une gaine en aluminium AG3 de diamètre nominale 9,5x10,6mm et de hauteur nominale 91,5x103,5mm. Afin de maintenir la tige au centre du conteneur, les bouchons de l'échantillon sont partiellement percés et maintenus par collage au tube de guidage, afin d'assurer son étanchéité.

L'interprétation de cette nouvelle expérience a été réalisée au SPRC/LEPh sur la base de calculs TRIPOLI-4 modélisant la géométrie exacte en 3D du réacteur MINERVE. APOLLO2 a également été employé pour fournir les coefficients adjoints nécessaires à l'interprétation des effets en réactivité, pour le calcul des corrections expérimentales (impuretés réactives et effets de diffusion/fuite), pour la propagation des incertitudes



et pour les analyses de sensibilité. Nous présentons dans le Tableau 5.38 les résultats de ces travaux obtenus à partir de la bibliothèque de données JEFF-3.1.1 ainsi que leur extrapolation à la dilution infinie [APPLI-43] :

	[C/E-1] TRIPOLI4.8 / JEFF-3.1.1	
Section de capture	Effet en réactivité (%)	Extrapolation à dilution infinie (%)
$^{103}\text{Rh} (n, \gamma)$	$0,2 \pm 1,7$	$0,4 \pm 1,9$

**Tableau 5.38 – Tendance sur la section efficace de capture du  $^{103}\text{Rh}$ - interprétation du programme MAESTRO**

L'incertitude associée est donnée à  $1\sigma$  et prend en compte les composantes liées à la mesure, au calibrage des effets en réactivité, à la convergence du calcul ainsi qu'aux données physiques de l'expérience. La tendance sur la section efficace de capture est alors traduite en valeur du point thermique.

Section de capture à 2200 m.s <sup>-1</sup>	JEF-2.2	JEFF-3.1.1	ENDF/B-VII.V1	JENDL-4	Atlas of neutron resonances	Mesure MAESTRO
$^{103}\text{Rh} (n, \gamma)$	146,3 b	142,7 b	$142,1 \pm 4,8$ b	133,1 b	$143,5 \pm 1,5$ b	$143,4 \pm 2,8$ b

**Tableau 5.39 – Comparaison des valeurs de la section de capture (en barn) du  $^{103}\text{Rh}$  au point thermique des principales évaluations de données nucléaires à la valeur mesurée lors du programme MAESTRO**

Le Tableau 5.39 montre que la mesure par oscillation de la section de capture du  $^{103}\text{Rh}$  est parfaitement cohérente avec les valeurs présentes dans les évaluations JEFF-3.1.1 et ENDF/B-VII.1, de même qu'avec la valeur issue des récentes mesures microscopiques réalisées à l'IRMM sur l'installation GELINA ( $142 \pm 1,5$  b).

En complément, d'autres mesures seront réalisées au cours de la phase 3 du programme MAESTRO en utilisant des échantillons de type poudre dont les exigences de granulométrie seront particulièrement sévères ( $< 10 \mu\text{m}$ ). Au final, ce résultat sur le  $^{103}\text{Rh}$  confirme qu'il était tout à fait justifié de réduire la capture thermique de JEF-2.2 de 2%, tel que proposé par le CEA lors du passage à version 3.1 de la bibliothèque JEFF.

## 5.5 Méthodologie de prise en compte des PF dans les études CBU REP-MOx

Les résultats d'interprétation des programmes CBU et MAESTRO peuvent nous permettre de déterminer directement des facteurs de pénalité à appliquer sur l'antiréactivité apportée par chacun des produits de fission du CBU REP-MOx en fonction des tendances sur les données nucléaires observées. Tout comme l'interprétation du programme d'oscillation OSMOSE nous a permis de déterminer les facteurs à appliquer au poids en réactivité des isotopes  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$  et  $^{243}\text{Am}$ . La Méthode des Expériences Intégrales, basée sur une approche bayésienne, peut également permettre de prendre en compte l'apport de ces expériences intégrales d'oscillation dans le but de propager et de transposer les incertitudes dues aux données nucléaires de base à une application [APPLI-44]. Cette démarche nécessite de disposer, comme dans le cas des principaux actinides composant le combustible MOx, de matrices de covariance réalistes pour les 15 produits de fission considérés. Un recensement des données disponibles dans les principales bases de données de covariance a donc été effectué.



### 5.5.1 Etat des lieux des données nucléaires disponibles

Les sources suivantes de données de covariance ont été consultées :

- bibliothèque COMAC (COvariance Matrices from Cadarache) associée à l'évaluation JEFF-3.1.1 ;
- bibliothèque BOLNA ;
- projet « Low-fidelity covariance » [APPLI-45] ;
- bibliothèque COMMARA-2.0 [APPLI-46] ;
- bibliothèque de données de covariance associée à l'évaluation ENDF/B-VII.V1 ;
- bibliothèque de données de covariance associée à l'évaluation TENDL-2011 [APPLI-47] ;
- bibliothèque de données de covariance associée au package SCALE-6 [APPLI-48] ;
- évaluations JENDL-3.3 [APPLI-49] et JENDL-4 .

Le contenu de chacune d'entre elles concernant les quinze produits de fission du CBU est à présent détaillé.

#### COMAC

Seules des données relatives au  $^{155}\text{Gd}$  sont présentes, données issues du code CONRAD (analyse rétro-active sur le domaine allant de l'énergie thermique à 20 MeV, marginalisation des paramètres de nuisances et module de mise en groupe) avec prise en compte du retour des expériences d'oscillation dans MINERVE (échantillon Gd5) [APPLI-50]. Les informations « a priori » utilisées pour le processus de marginalisation rétroactive proviennent des dernières mesures des paramètres de résonance du  $^{155}\text{Gd}$  par mesure du temps de vol au LINAC du Rensselaer Polytechnic Institute (USA) utilisant des échantillons de gadolinium métallique et en solution prises en compte dans l'évaluation JEFF-3.1.1. La matrice de covariance liant ces paramètres est déduite d'après les incertitudes expérimentales présentées dans [APPLI-51] et la valeur de l'intégrale de résonance recommandée dans [APPLI-52]. Le processus d'assimilation de données intégrales a été réalisé par le biais de l'utilitaire CadTui [APPLI-53] permettant de créer une interface entre les codes CONRAD, PIMS et GALILEE. GALILEE permet de générer trois jeux de sections efficaces par paramètre de résonance ( $\Gamma_n$  et  $\Gamma_\gamma$ ) associé à la section efficace de capture du  $^{155}\text{Gd}$  : un associé à sa valeur nominale et deux associés à des valeurs modifiées de + 1 % et - 1 %. PIMS permet d'évaluer les coefficients de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à chacun des paramètres par évaluation de l'écart entre les valeurs obtenues pour le jeu nominal et les jeux modifiés. Les coefficients de sensibilité ainsi déterminés sont alors utilisés par CONRAD pour déterminer un jeu de paramètres de résonance « a posteriori » en tenant compte de l'écart calcul/expérience fourni par l'oscillation de l'échantillon Gd5 dans MINERVE. Le processus est itératif jusqu'à obtention d'une valeur minimale de l'écart calcul-expérience. La matrice obtenue est présentée Figure 5.28.

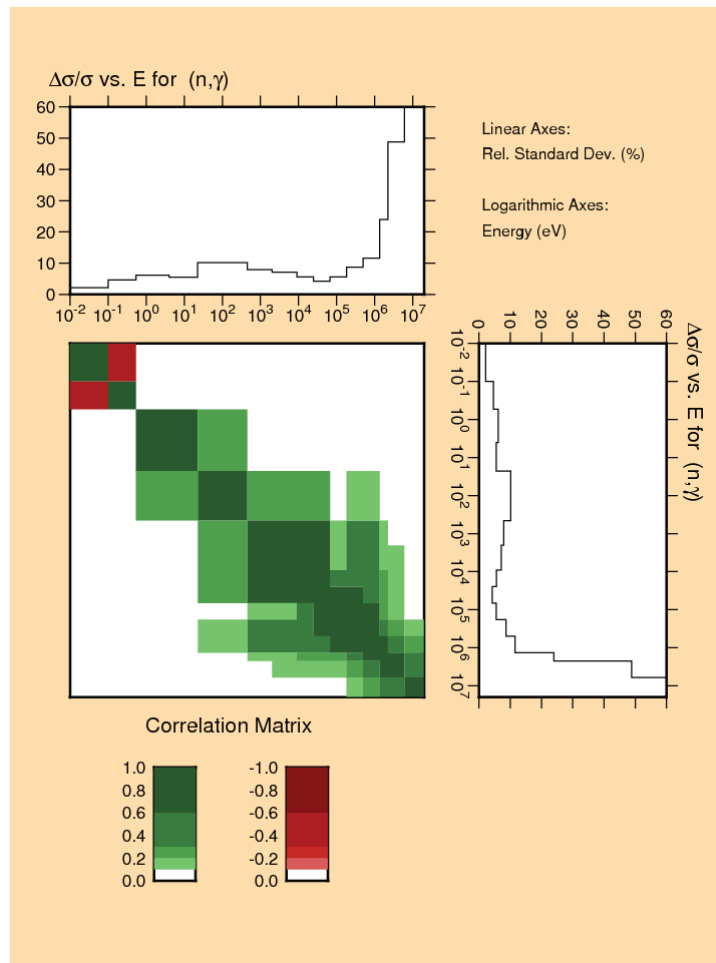


Figure 5.28 – Corrélations et incertitudes associées à la capture du  $^{155}\text{Gd}$  dans COMAC V0

## BOLNA

BOLNA est une bibliothèque de données de covariance à 15 groupes issues des travaux des laboratoires Brookhaven-Oak Ridge-Los Alamos-NRG Petten-Argonne) dans le cadre du WPEC (Working Party on International Nuclear Data Evaluation Co-operation ) Subgroup 26 « Uncertainty and Target Accuracy Assessment for Innovative Systems Using Recent Covariance Data Evaluations » de l'OCDE/AEN. Concernant les 15 produits de fission du CBU, seules des données relatives au  $^{155}\text{Gd}$  y sont présentes.

### Projet « Low-fidelity covariance »

Le projet « Low-fidelity covariance » a permis d'obtenir un ensemble de données de covariance pour l'ensemble des isotopes présents dans l'évaluation ENDF/B-VII.0 pour les réactions suivantes : diffusions élastique et inélastique, capture radiative et fission dans un domaine énergétique s'étendant de  $10^{-5}$  eV à 20 MeV. Pour générer ces données, de nombreuses approximations ont été faites suivant la masse de l'isotope, le type de réaction et l'énergie des neutrons considérés.

Ces données ne font pas officiellement partie de l'évaluation ENDF/B-VII.0.

**COMMARA-2.0**

La bibliothèque de données de covariance à 33 groupes ( $10^{-5}$  eV à 19,6 MeV) COMMARA-2.0 (Covariance Multigroup Matrix for Advanced Reactor Applications) a été développée dans le cadre d'une collaboration BNL-LANL de 2008 à 2010. Elle contient des données relatives à 12 noyaux légers, 78 matériaux de structure et produits de fission et 20 actinides. En particulier, des données sont disponibles pour 13 des 15 produits de fission du CBU :  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ . Elles sont issues d'un processing NJOY utilisant une pondération par un flux en  $1/E$ . Le Tableau 5.40 récapitule l'origine de ces données.

<b>Produit de fission du CBU REP-MOX</b>	<b>Origine des données de covariances</b>
$^{95}\text{Mo}$	Covariances were obtained at BNL in 2010 using kernel approach in the resonance region and EMPIRE/KALMAN analysis of experimental data in the fast neutron region
$^{99}\text{Tc}$	ENDF/B-VII.V0
$^{101}\text{Ru}$	Covariances were adopted from the low-fidelity file revisited at BNL in 2009.
$^{103}\text{Rh}$	Covariances were adopted from the low-fidelity file revisited at BNL in 2009.
$^{109}\text{Ag}$	New covariances in the fast neutron region were produced at BNL using EMPIRE/KALMAN approach and merged with the revised Low-fidelity estimates in the resonance region. The experimental data are available for total, elastic and capture.
$^{133}\text{Cs}$	New covariances in the fast neutron region were produced at BNL in 2010 using EMPIRE/KALMAN approach and merged with the revised low-fidelity estimates in the resonance region.
$^{143}\text{Nd}$	New covariances in the fast neutron region were produced at BNL using EMPIRE/KALMAN approach and merged with the revised Low-fidelity estimates in the resonance region.
$^{145}\text{Nd}$	New covariances in the fast neutron region were produced at BNL using EMPIRE/KALMAN approach and merged with the revised Low-fidelity estimates in the resonance region.
$^{149}\text{Sm}$	Covariances were adopted from the low-fidelity file revisited at BNL in 2009.
$^{151}\text{Sm}$	Covariances were adopted from the low-fidelity file revisited at BNL in 2009.
$^{152}\text{Sm}$	Covariances were adopted from the low-fidelity file revisited at BNL in 2009.
$^{153}\text{Eu}$	Covariances were adopted from the low-fidelity file revisited at BNL in 2009.
$^{155}\text{Gd}$	Covariances from the ENDF/B-VII.0 library produced by ORNL-BNL collaboration were adopted. These covariances are based on retroactive SAMMY analysis in the resonance region, and on EMPIRE/KALMAN approach in the fast neutron region.

**Tableau 5.40 – Origine des données de covariance des 13 PF du CBU traités dans la bibliothèque COMMARA-2.0**

**Evaluation ENDF/B.VII.V1**

La bibliothèque de données de covariance associée à l'évaluation ENDF/B-VII.V1 contient des informations relatives à 185 isotopes dont 49 produits de fission parmi lesquels sont traités  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{133}\text{Cs}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ . Les données de covariance présentes dans cette évaluation proviennent majoritairement de la base COMMARA 2.0 comme l'indique le Tableau 5.41 :

Produit de fission du CBU REP-MOX	Origine des données de covariances
$^{95}\text{Mo}$	COMMARA 2.0
$^{99}\text{Tc}$	ENDF/B-VII.V0
$^{101}\text{Ru}$	COMMARA 2.0
$^{103}\text{Rh}$	COMMARA 2.0
$^{109}\text{Ag}$	COMMARA 2.0
$^{133}\text{Cs}$	ENDF/B-VII.V0
$^{143}\text{Nd}$	COMMARA 2.0
$^{145}\text{Nd}$	COMMARA 2.0
$^{149}\text{Sm}$	COMMARA 2.0
$^{151}\text{Sm}$	COMMARA 2.0
$^{152}\text{Sm}$	COMMARA 2.0
$^{153}\text{Eu}$	COMMARA 2.0
$^{155}\text{Gd}$	ENDF/B-VII.V0

**Tableau 5.41 – Origine des données de covariance des 13 PF du CBU traités dans l'évaluation ENDF/B-VII.V1**

**Evaluation TENDL-2011 (THALYS-based Evaluated Nuclear Data Library)**

Les données de covariance sont générées par le code TASMAN. Les 15 produits de fission du CBU sont renseignés. On remarque un plus grand nombre de réactions traitées.

**Package SCALE-6**

Les données utilisées sont issues de la bibliothèque de matrices de covariance de sections efficaces à 44 groupes ZZ-SCALE6/COVA-44G du package SCALE-6 incluant la bibliothèque 44GRPCOV au format COVERX. Elle inclut des valeurs de covariances dites « high fidelity » issues des évaluations ENDF/B-VII, ENDF/B-VI et JENDL-3.3 pour plus de 50 éléments ainsi que des données de covariance dites « approximate » ou « low-fidelity », estimées indépendamment d'une évaluation de données nucléaires spécifique telles que :

- BLO (BNL-LANL-ORNL) : covariances « low-fidelity » issues du projet BLO ;
- BLO LANL : évaluation LANL matrice-R du projet BLO ;
- SG-26 : « approximate » covariances du groupe WPEC Subgroup-26.

Le Tableau 5.42 reprend l'origine des données associées aux 15 produits de fission du CBU REP-MOX.

Produit de fission du CBU REP-MOX	Origine des données de covariances
<sup>95</sup> Mo	BLO approximate data
<sup>99</sup> Tc	ENDF/B-VII.V0
<sup>101</sup> Ru	BLO approximate data
<sup>103</sup> Rh	BLO approximate data
<sup>109</sup> Ag	BLO approximate data
<sup>133</sup> Cs	BLO approximate data
<sup>143</sup> Nd	BLO approximate data
<sup>145</sup> Nd	BLO approximate data
<sup>147</sup> Sm	BLO approximate data
<sup>149</sup> Sm	BLO approximate data
<sup>150</sup> Sm	BLO approximate data
<sup>151</sup> Sm	BLO approximate data
<sup>152</sup> Sm	BLO approximate data
<sup>153</sup> Eu	BLO approximate data
<sup>155</sup> Gd	ENDF/BVII.V0

Tableau 5.42 – Origine des données de covariance SCALE-6.1 des 15 PF du CBU

### Evaluations JENDL

Aucune donnée de covariance n'est disponible pour les 15 PF du CBU dans les évaluations japonaises JENDL-3.3 et JENDL-4.

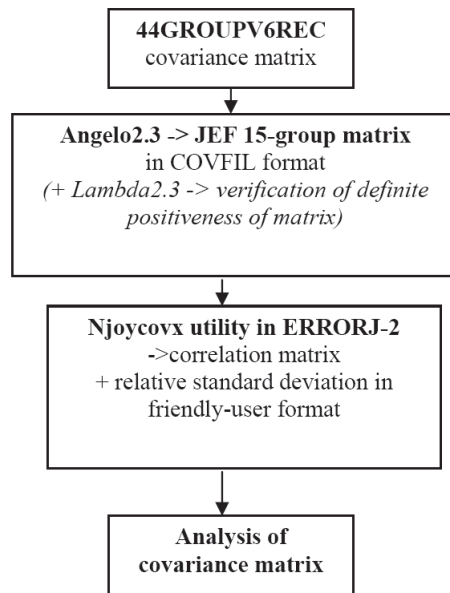
Le Tableau 5.43 synthétise les données de covariance disponibles pour les 15 produits de fission du CBU dans les différentes bibliothèques recensées.

Produit de fission	Base de données de covariances						
	COMAC V0	BOLNA	COMMARA-2.0	TENDL	SCALE-6	ENDF VII	JENDL
<sup>95</sup> Mo			✓	✓	✓	✓	
<sup>99</sup> Tc			✓	✓	✓	✓	
<sup>101</sup> Ru			✓	✓	✓	✓	
<sup>103</sup> Rh			✓	✓	✓	✓	
<sup>109</sup> Ag			✓	✓	✓	✓	
<sup>133</sup> Cs			✓	✓	✓	✓	
<sup>143</sup> Nd			✓	✓	✓	✓	
<sup>145</sup> Nd			✓	✓	✓	✓	
<sup>147</sup> Sm				✓	✓		
<sup>149</sup> Sm			✓	✓	✓	✓	
<sup>150</sup> Sm				✓	✓		
<sup>151</sup> Sm			✓	✓	✓	✓	
<sup>152</sup> Sm			✓	✓	✓	✓	
<sup>153</sup> Eu			✓	✓	✓	✓	
<sup>155</sup> Gd	✓ (JEFF-3.1.1)	✓	✓	✓	✓	✓	

Tableau 5.43 – Données de covariances disponibles dans les différentes bases de données

Le choix des matrices les plus réalistes repose à la fois sur les données JEFF-3.1.1 et sur un avis d'expert. Les valeurs provenant de l'évaluation TENDL ne sont pas retenues car plus adaptées aux problématiques traitant des spectres rapides.

Nous constatons que les maillages énergétiques utilisés pour les matrices de covariance disponibles dans ces évaluations diffèrent (15, 33 et 44 groupes). Afin de pouvoir comparer ces données et de pouvoir les utiliser dans le cadre d'études menées avec l'outil RIB travaillant sur le maillage JEF-15, des outils de condensation de ces données sont nécessaires. Deux d'entre eux ont été utilisés aux cours de ces travaux. Le premier, ANGELO-2.3 [APPLI-54], permettant la condensation et l'expansion de données de covariance sur un nouveau maillage énergétique pour des fichiers de formats spécifiques BOXR, COVFIL et COVERX, ce dernier type de format étant celui des matrices associées à SCALE-6, est un outil de l'OCDE/AEN. Il utilise un flux de pondération plat. Afin de vérifier le caractère défini-positif des matrices traitées, sa mise en œuvre est suivie de celle du code LAMBDA-2.3 [APPLI-54] déterminant les valeurs propres de la matrice initiale et de la matrice obtenue par condensation ou expansion. L'enchaînement des outils ANGELO-2.3 et LAMBDA-2.3 est présenté Figure 5.29.



**Figure 5.29 – Processus de condensation de 44 à 15 groupes des matrices au format .matrix utilisées par SCALE**

Le second, CadTui, a été développé au SPRC/LEPh afin de processor des fichiers d'évaluation de données nucléaires au format standard ENDF. Il s'agit d'un générateur de scripts NJOY. Il permet entre autres la condensation de données de covariance sur un nouveau maillage énergétique. Un flux de pondération correspondant à un flux observé dans un REP (forme en  $1/E$  + spectre de fission + Maxwellienne thermique) a été utilisé pour les travaux de condensation des matrices de covariance associées aux produits de fission du CBU.

### 5.5.2 Démarche d'élaboration de matrices de covariances réalistes

Compte-tenu de la bonne évaluation de la capture des isotopes  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ , obtenue suite à l'interprétation des programmes MAESTRO et CBU, les écarts C/E associés et leurs incertitudes peuvent être utilisés dans le cadre d'une ré-estimation de leurs données nucléaires via le code de Ré-estimation des Données Nucléaires RDN [APPLI-12] [APPLI-13]. Concernant les autres isotopes, si des données expérimentales pertinentes sont disponibles dans la littérature, la création d'une matrice est possible grâce à CONRAD, sachant que des matrices sont également disponibles pour d'autres évaluations.

Les matrices de covariance « a priori » ont été choisies dans la base de données américaine ENDF/B-VII.V1, largement utilisée dans le monde pour les études de propagation d'incertitudes.

### 5.5.2.1 Réestimation des Données Nucléaires de Base (RDN)

La méthode de ré-estimation des données nucléaires permet d'intégrer une partie des informations apportées par les mesures différentielles (incertitudes sur les données nucléaires de base) et celles provenant des expériences intégrales d'oscillation dans le réacteur MINERVE des produits de fission du CBU au cours des programmes CBU et MAESTRO (écarts calcul-expériences, incertitudes expérimentales) et de déterminer la matrice de covariance associée aux données nucléaires ré-estimées. Cette méthode se place dans le cadre du théorème de Bayes et permet de déterminer la probabilité d'obtenir des paramètres ajustés (« a posteriori »)  $\vec{x}^*$  en fonction des paramètres connus « a priori »  $\vec{x}$  et des informations expérimentales  $\vec{y}$  relatives à la grandeur physique  $\vec{z}$  grâce à la relation :

$$p(\vec{x}^*|\vec{y}, \vec{x}) = \frac{p(\vec{y}|\vec{x}^*, \vec{x})p(\vec{x}^*|\vec{x})}{\int p(\vec{x}^*|\vec{x})p(\vec{y}|\vec{x}^*, \vec{x})d\vec{x}^*} \quad (5.40)$$

où  $p(\vec{x}^*|\vec{y}, \vec{x})$  est la densité de probabilité « a posteriori »,  $p(\vec{x}^*|\vec{x})$  la densité de probabilité « a priori » et  $p(\vec{y}|\vec{x}^*, \vec{x})$  la fonction de vraisemblance indiquant la vraisemblance des mesures sachant les paramètres  $\vec{x}$  et  $\vec{x}^*$  inconnus.

Pour résoudre ce problème, on fait l'hypothèse que la densité de probabilité « a priori » suit une loi gaussienne tout comme la fonction de vraisemblance :

$$p(\vec{x}^*|\vec{x}) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}(\vec{x}^* - \vec{x})^t M_x^{-1}(\vec{x}^* - \vec{x})\right) \text{ et } p(\vec{y}|\vec{x}^*, \vec{x}) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}(\vec{z} - \vec{y})^t M_y^{-1}(\vec{z} - \vec{y})\right) \quad (5.41)$$

où  $M_x$  et  $M_y$  sont les matrices de variance-covariance. La densité de probabilité « a posteriori »  $p(\vec{x}^*|\vec{y}, \vec{x})$  est elle aussi considérée comme étant de type gaussien. L'expression ( ) peut être vue comme l'actualisation d'une connaissance « a priori » par une fonction de vraisemblance relative à de nouvelles mesures :

$$[aposteriori][p(\vec{x}^*|\vec{y}, \vec{x})] \propto [apriori][p(\vec{x}^*|\vec{x})].[vraisemblance][p(\vec{y}|\vec{x}^*, \vec{x})] \quad (5.42)$$

On peut alors en déduire la densité de probabilité « a posteriori » :

$$p(\vec{x}^*|\vec{y}, \vec{x}) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}\left[(\vec{x}^* - \vec{x})^t M_x^{-1}(\vec{x}^* - \vec{x}) + (\vec{z} - \vec{y})^t M_y^{-1}(\vec{z} - \vec{y})\right]\right) \quad (5.43)$$

La détermination des paramètres inconnus est réalisée grâce au principe de la maximisation de la vraisemblance. Maximiser la vraisemblance revient à minimiser la dérivée de son logarithme que l'on appellera « fonction de coût » et notera  $f$ , définie par :

$$f(\vec{x}^*) = (\vec{x}^* - \vec{x})^t M_x^{-1}(\vec{x}^* - \vec{x}) + (\vec{z} - \vec{y})^t M_y^{-1}(\vec{z} - \vec{y}) \quad (5.44)$$

Cette minimisation effectuée par une méthode des moindres carrés généralisés s'effectue au cours d'un procédé itératif par la méthode de Gauss-Newton. On recherche  $\vec{x}^*$  tel que  $grad(f(\vec{x}^*))=0$  pour trouver un extremum de  $f$  en supposant l'« a priori » proche de la solution recherchée. L'extremum trouvé est alors l'optimum de la fonction coût. Lorsque la convergence est atteinte au bout de  $n$  itérations avec comme test de convergence la variation de  $S$ , la matrice de covariance « a posteriori » est donnée par la relation :

$$M_{x^*} = (M_x^{-1} + S_n^t M_y^{-1} S_n)^{-1} \quad (5.45)$$

où  $S$  est la matrice de sensibilité définie par  $S_{i,j} = \frac{\partial z_i}{\partial x_j^*}$ .

L'incertitude « a posteriori » due aux données nucléaires est alors déterminée par la formule dite « du sandwich » prenant en compte les vecteurs de sensibilité  $S^*$  associés aux données nucléaires ré-estimées ainsi que la matrice de variance-covariance intégrant les corrections apportées par la prise en compte des mesures intégrales :

$$\epsilon = \sqrt{S^{*'} M_{X^*} S^*} \quad (5.46)$$

Cette méthode a été implémentée dans le logiciel RDN (Réestimation des Données Nucléaires), développé sous environnement Matlab, qui permet l'obtention directe de tendances sur les données nucléaires ainsi que leurs intervalles de confiance associés. Il se présente sous la forme d'une interface utilisateur (Figure 5.30) et le fichier d'entrée à soumettre contient les informations suivantes :

- écarts calcul-expérience des mesures considérées (dans notre cas les expériences d'oscillations d'isotopes séparés dans le réacteur MINERVE) et incertitudes associées ;
- corrélations éventuelles entre les expériences utilisées ;
- coefficients de sensibilité des expériences aux données nucléaires ;
- corrélations des données nucléaires microscopiques.

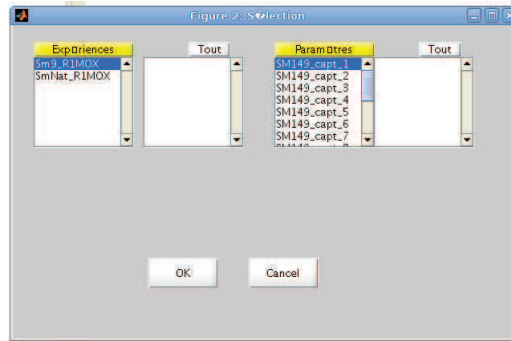


Figure 5.30 – Interface du logiciel RDN – sélection des expériences et des paramètres

Une seule itération est effectuée par RDN car le recalcul des coefficients de sensibilité et des écarts calcul-expérience à chaque pas afin d'effectuer une nouvelle minimisation de la fonction de coût  $f$  serait très lourd en temps de calcul. Notons que RDN a bénéficié d'une validation par rapport au code de ré-estimation AMERE.

Dans le cadre de ces travaux, nous avons choisi d'élaborer et d'introduire prioritairement dans l'outil RIB les matrices de covariance associées à la capture de deux des principaux isotopes du CBU-REP-MOX : le  $^{149}\text{Sm}$  et le  $^{103}\text{Rh}$ , isotopes intervenant également dans des problématiques autres que la seule application Crédit Burn-up [APPLI-55]. Le  $^{149}\text{Sm}$  intéresse également des problématiques réacteur, cet isotope étant particulièrement gênant pour l'exploitant lors du redémarrage de celui-ci puisque sa disparition ne peut avoir lieu que par capture neutronique.

### 5.5.2.2 Cas du $^{149}\text{Sm}$

Parmi les échantillons d'isotopes séparés oscillés dans le réacteur MINERVE, les échantillons Sm9 et SmNAT, dont l'effet en réactivité est à 98 % dû à la présence du  $^{149}\text{Sm}$ , permettent de dégager une tendance sur la capture du  $^{149}\text{Sm}$ . Ce sont donc ces deux échantillons qui vont être considérés pour la ré-estimation des données associées à la capture de cet isotope par le biais du code RDN. Une corrélation de 0,5 entre ces deux expériences d'oscillation provenant d'un jugement d'expert est prise en compte. En prenant en compte ces deux mesures, l'incertitude de mesure liée au comptage (incertitude statistique) sera diminuée de moitié.



Après comparaison des différentes matrices de covariance liées à la capture du  $^{149}\text{Sm}$  identifiées précédemment dans la littérature, la matrice présente dans l'évaluation américaine ENDF/B-VII.V1, condensée à 15 groupes par l'outil CadTui, a été retenue du fait du caractère réaliste de ces incertitudes (Figure 5.31).

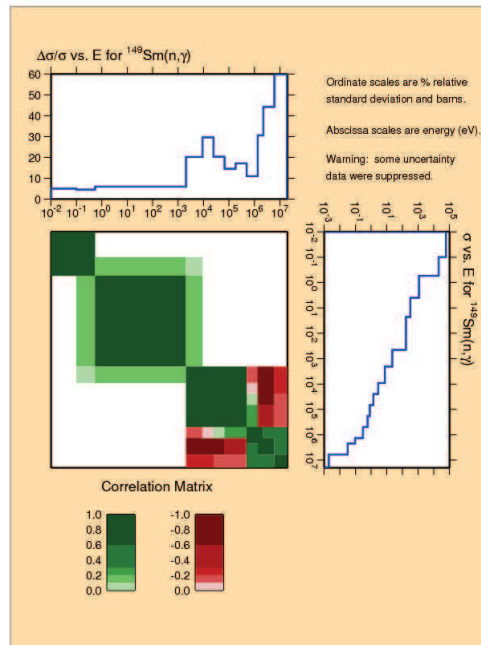


Figure 5.31 – Matrice « a priori » des corrélations et incertitudes du  $^{149}\text{Sm}$  ENDF/B-VII.V1 (COMMARA-2.0) associée à la capture radiative condensée à 15 groupes avec CadTui

Comme le montrent les profils de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture du  $^{149}\text{Sm}$  (Figures 5.32 5.33), celui-ci est un poison purement thermique.

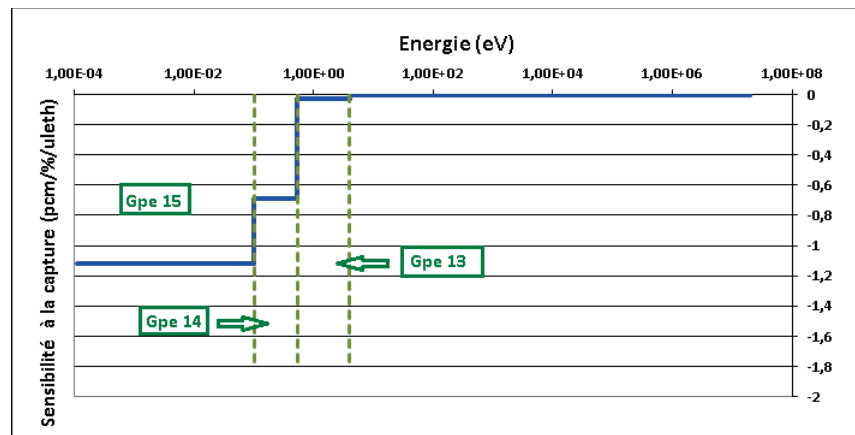


Figure 5.32 – Profils de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture du  $^{149}\text{Sm}$  - assemblage REP-MOx Dampierre-2, TC=50 GWj/t, TR=0

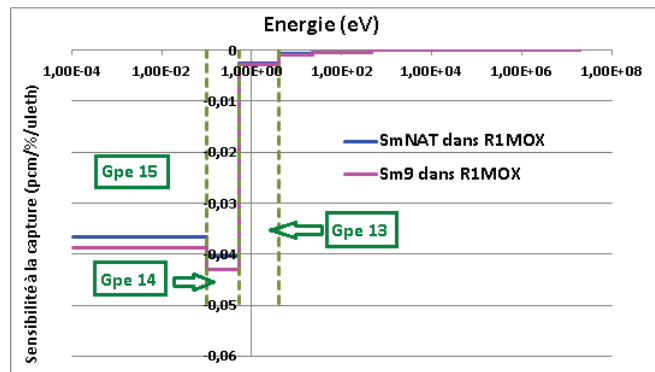


Figure 5.33 – Profils de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture du  $^{149}\text{Sm}$  contenu dans les échantillons Sm9 et SmNAT - réseau R1MOX du réacteur MINERVE - programme CBU

En effet, la réactivité apparaît sensible à la section de capture du  $^{149}\text{Sm}$  uniquement dans les groupes 14 ( $0,1 < E < 0,5$  eV) et 15 ( $E < 0,1$  eV) du maillage énergétique. La réduction de l'incertitude suite à l'intégration du retour MINERVE va donc uniquement affecter ces deux groupes, comme le montre le Tableau 5.44.

Groupe Énergétique JEF-15	incertitude « a posteriori » ( $1\sigma$ ) %	incertitude « a priori » ( $1\sigma$ ) %
14 ( $0,1 < E < 0,5$ eV)	3,09	4,58
15 ( $E < 0,1$ eV)	3,38	5,00

Tableau 5.44 – Estimation fournie par RDN pour l'incertitude de la section de capture du  $^{149}\text{Sm}$

La nouvelle matrice de covariance associée, implémentée dans l'outil RIB [APPLI-55] est présentée Figure 5.34.

DIANE (Database of Integral experiments for Advanced Neutronic Expertise in Criticality)

File

Graphic

Database(s) used

Experiments search

Plugin(s) ?

Setup

RFile

Loaded file :

file:/home/ac222551/version\_rib\_19\_03\_2013/8dQ/Matrice\_Covariance/matrice\_jeff-311\_SM149\_GD155.xml

Browse

Name : Covariance SPRC-JEFF-3.1.1-SM149-RI103-GD155.xml

Description : 15 q - CEA/SPRC/JEFF-3.1.1

Uncertainty/Correlation coef

Energetic mesh

SM149 CAPTURE	SM149	CAPTURE	groups	62.44	44.28	30.61	11.01	17.19	14.57	20.34	29.6	20.2	5.99	5.99	5.99	5.99	3.09	3.38
			1	1.0	0.56	0.45	0.31	-0.14	-0.12	-0.18	-0.22	-0.22	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			2	0.56	1.0	0.97	0.59	-0.58	-0.53	-0.66	-0.74	-0.75	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			3	0.45	0.97	1.0	0.67	-0.57	-0.51	-0.67	-0.76	-0.78	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			4	0.31	0.59	0.67	1.0	0.2	0.29	0.09	-0.06	-0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			5	-0.14	-0.58	-0.57	0.2	1.0	0.99	0.98	0.95	0.93	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			6	-0.12	-0.53	-0.51	0.29	0.99	1.0	0.97	0.93	0.91	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			7	-0.18	-0.66	-0.67	0.09	0.98	0.97	1.0	0.99	0.97	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			8	-0.22	-0.74	-0.76	-0.06	0.95	0.93	0.99	1.0	0.99	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
			9	-0.22	-0.75	-0.78	-0.1	0.93	0.91	0.97	0.99	1.0	0.12	0.12	0.12	0.12	0.02	-0.01
			10	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.12	1.0	1.0	1.0	1.0	0.13	-0.04
			11	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.12	1.0	1.0	1.0	1.0	0.13	-0.04
			12	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.12	1.0	1.0	1.0	1.0	0.13	-0.04
			13	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.12	1.0	1.0	1.0	1.0	0.13	-0.04
			14	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.02	0.13	0.13	0.13	1.0	0.99
			15	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	-0.01	-0.04	-0.04	-0.04	0.99	1.0

Figure 5.34 – Matrice de covariance « a posteriori » du  $^{149}\text{Sm}$  implémentée dans l'outil RIB

Sa structure a été conservée. Cependant, nous pouvons constater que les nouvelles corrélations calculées ont diminué dans les trois groupes les plus thermiques. En effet, la valeur des corrélations est liée à l'étalement des mesures relatives à la réaction considérée (erreur de normalisation propre à toutes les mesures différentielles). En prenant en compte les tendances sur les données nucléaires associées à cette réaction, données par l'expérience intégrale concernant le domaine thermique, on diminue le lien entre ce domaine énergétique et le reste du spectre et par conséquent les valeurs des corrélations.

Une autre démarche a également été entreprise afin de produire une matrice de covariance « a priori »

réaliste et associée à l'évaluation JEFF-3.1.1. Elle est basée sur la technique de marginalisation rétroactive par le biais du code CONRAD présenté au Chapitre 1, paragraphe 1.3.2.1. Cette méthode est détaillée en **Annexe C**. Cette technique d'ajustement des données nucléaires consiste à évaluer les variances et covariances des paramètres de modèle décrivant dans notre cas la section efficace de capture sans que l'évaluation des données ne soit modifiée. De ce fait, cette méthode est qualifiée de « rétroactive ». Les informations a priori ont été extraites de cinq mesures disponibles dans la base de données expérimentales EXFOR [APPLI-56] (une mesure de section totale, trois mesures de transmission et une mesure de section de capture) et réalisées sur des échantillons de samarium naturel (Tableau 5.45), les expériences existantes relatives à l'isotope  $^{149}\text{Sm}$  ne présentant pas un nombre suffisant de points de mesure pour être exploitées [APPLI-57] [APPLI-58]. Une pondération sur l'abondance du  $^{149}\text{Sm}$  au sein du samarium naturel (13.9%) est donc prise en compte.

Mesure	Année	Auteur	Domaine énergétique (eV)	Caractéristiques échantillons
1 section efficace totale	1993	Macklin	0,361-3,27E-4	Samarium naturel poudre pressée $\text{Sm}_2\text{O}_3$
3 transmissions 1 section efficace de capture	2002	Leinweber	4-30,5	Samarium naturel métallique

**Tableau 5.45 – Expériences différentielles sélectionnées pour l'élaboration de la matrice de covariance « a priori » du  $^{149}\text{Sm}$  avec CONRAD**

L'analyse rétro-active a été menée sur les groupes 10 à 15 du maillage énergétique JEF-15 couvrant le domaine  $1.10^{-1} - 2,0347.10^3$  eV, le  $^{149}\text{Sm}$  étant un poison thermique. Le modèle de réaction nucléaire de Reich-Moore décrit la section efficace totale par un nombre important de paramètres, seul un nombre limité de paramètres de résonance a été pris en compte pour ce travail. Seules les résonances de nombre quantique azimutal  $l=0$  sont considérées car elles impactent plus fortement la section efficace que les résonances  $l=1$ . Les incertitudes sur les paramètres de résonance sont obtenues en marginalisant les incertitudes relatives aux compositions des échantillons retenus, au bruit de fond, ainsi qu'une incertitude relative sur la normalisation. Concernant le traitement du reste du domaine énergétique, les valeurs correspondant aux groupes énergétiques associés proviennent de l'évaluation américaine ENDF/B-VII.V1. Les résultats obtenus restent à être affinés.

### 5.5.2.3 Cas du $^{103}\text{Rh}$

L'expérience retenue pour la ré-estimation des incertitudes liées à la section de capture du  $^{103}\text{Rh}$  est l'expérience d'oscillation de l'échantillon de rhodium pur réalisée dans le cadre de la Phase-I du programme MAESTRO confirmant la bonne prédiction de son effet en réactivité avec l'évaluation JEFF-3.1.1. Bien que l'échantillon utilisé lors de ce programme soit un échantillon métallique, donc moins représentatif d'un produit de fission dans une matrice combustible tels que l'étaient les échantillons RhC1 et RhC2 du programme CBU, il présente un intérêt certain pour effectuer un retour sur les données nucléaires du  $^{103}\text{Rh}$ , ce que nous recherchons ici dans le but de produire une matrice de covariance réaliste associée à sa capture. La matrice de covariance « a priori » retenue associée à la capture du  $^{103}\text{Rh}$  est issue de l'évaluation ENDF/B-VII.V1 et est présentée Figure 5.35.

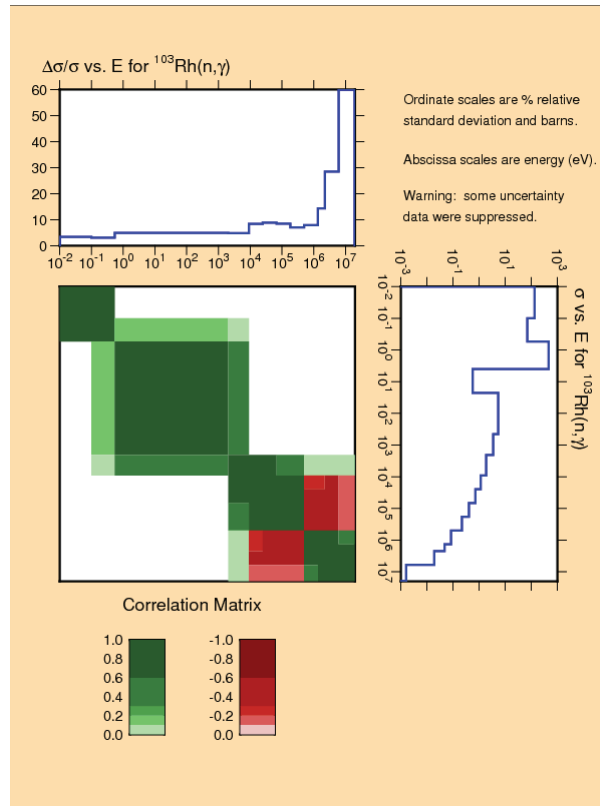
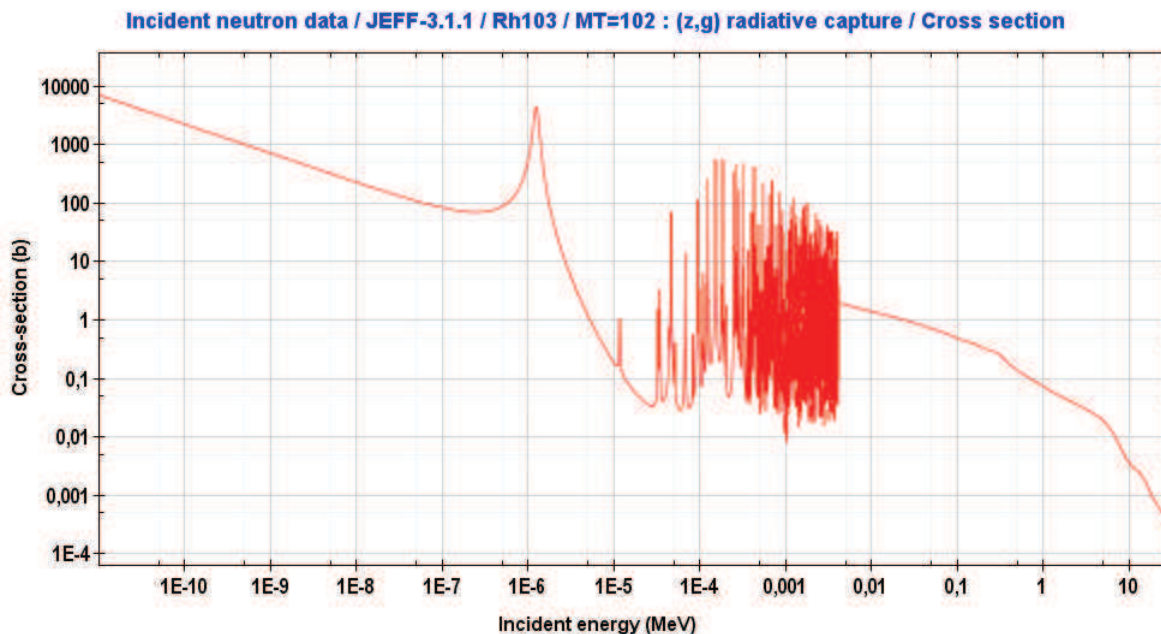
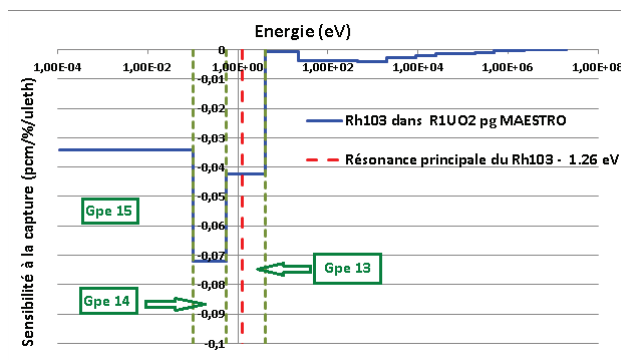


Figure 5.35 – Matrice « a priori » des corrélations et incertitudes du  $^{103}\text{Rh}$  ENDF/B-VII.V1 (COMMARA-2.0) associée à la capture radiative condensée à 15 groupes avec CadTui

Comme le montre la Figure 5.36, le  $^{103}\text{Rh}$  présente une résonance principale à 1,26 eV.


 Figure 5.36 – Section efficace de capture du  $^{103}\text{Rh}$  - évaluation JEFF-3.1.1

Cependant, l'étude du profil de sensibilité de la réactivité à cette section dans le réseau R1UO2 du réacteur MINERVE lors du programme MAESTRO montre que celle-ci lui est particulièrement sensible dans le groupe 14 ( $0,1 < E < 0,5$  eV). La majorité du taux de capture n'intervient donc pas dans cette résonance principale et est liée au domaine thermique.


 Figure 5.37 – Profil de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture du  $^{103}\text{Rh}$  dans le réseau R1UO2 du réacteur MINERVE - Programme MAESTRO

Il est important de noter que ce résultat, bien qu'obtenu dans le réseau R1UO2 reste représentatif d'une application REP-MOX comme le montre la Figure 5.38 présentant les profils de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture du  $^{103}\text{Rh}$  dans les réseaux R1MOx et R1UO2 du réacteur MINERVE se référant à l'oscillation des échantillons RhC1 et RhC2 lors du programme CBU.

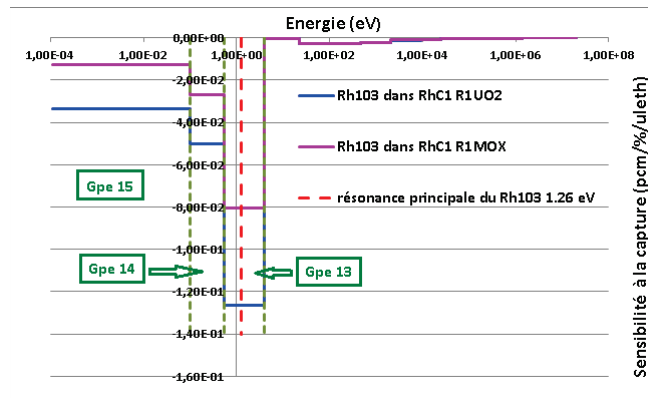


Figure 5.38 – Profils de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture du  $^{103}\text{Rh}$  dans les réseaux R1MOx et R1UO2 du réacteur MINERVE - Programme CBU

Compte-tenu de ces remarques, la réduction de l'incertitude suite à la prise en compte des informations fournies par l'interprétation du programme MAESTRO va donc concerner elle aussi principalement les groupes 14 et 15 comme le montre le Tableau 5.46.

Groupe Energétique JEF-15	incertitude « a posteriori » ( $1\sigma$ ) %	incertitude « a priori » ( $1\sigma$ ) %
9 (2,035 keV<E<9,119 keV)	4,74	4,81
10 (454 eV<E<2,035 keV)	4,60	4,88
11 (22,6 eV<E<454 eV)	4,60	4,88
12 (4 eV<E<22,6 eV)	4,60	4,88
13 (0,5 eV<E<4 eV)	4,60	4,88
14 (0,1<E<0,5 eV)	2,10	3,12
15 (E<0.1 eV)	2,43	3,40

Tableau 5.46 – Estimation fournie par RDN pour la section de capture du  $^{103}\text{Rh}$

La nouvelle matrice de covariance associée (Figure 5.39), désormais disponible dans l'outil RIB, a conservé sa structure initiale en deux blocs fortement distincts et de fortes corrélations entre les groupes 14 et 15 et dans le domaine résonnant. On constate également une diminution des corrélations entre les groupes 13, 14 et 15.

DIARE (Database of Integral experiments for Advanced Neutronic Experiments Critically)

File

Graphic

Database(s) used

Experiments search

Plugin(s) ?

Setup

File

Loaded file :

file:/home/ac222551/version\_rib\_19\_03\_2013/BdQ/Matrixe\_Covariance/matrice\_JEFF-311\_5m149\_Rh103\_Gd155.xml

Browse

Name : Covariance SPRC-JEFF-3.1.1-5m149-Rh103-Gd155.xml

Description : 15 g - CEASPRC/JEFF-3.1.1

Uncertainty/Correlation coef | Energetic mesh

RH103	RH103	CAPTURE	60.15	28.46	14.4	7.92	6.98	8.47	8.91	8.37	4.79	4.83	4.83	4.83	2.95	3.23	
CAPTURE		groups	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
60.15		1	1.0	0.71	0.63	0.43	-0.16	-0.19	-0.18	-0.11	0.01	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
28.46		2	0.71	1.0	0.99	0.9	-0.47	-0.53	-0.49	-0.31	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
14.4		3	0.63	0.99	1.0	0.95	-0.41	-0.52	-0.47	-0.28	0.05	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
7.92		4	0.43	0.9	0.95	1.0	1.0	-0.5	-0.49	-0.27	0.08	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
6.98		5	-0.16	-0.47	-0.41	1.01	1.0	0.97	0.89	0.73	0.36	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
8.47		6	-0.19	-0.53	-0.52	-0.5	0.97	1.0	0.97	0.84	0.47	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
8.91		7	-0.18	-0.49	-0.47	-0.49	0.89	0.97	1.0	0.94	0.63	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
8.37		8	-0.11	-0.31	-0.28	-0.27	0.73	0.84	0.84	1.0	0.81	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
4.79		9	0.01	0.05	0.08	0.36	0.47	0.63	0.81	1.0	0.42	0.42	0.42	0.42	0.42	0.04	-0.03
4.83		10	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.42	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	0.1	-0.05
4.83		11	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.42	1.0	1.0	1.0	1.0	0.1	-0.05
4.83		12	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.42	1.0	1.0	1.0	1.0	0.1	-0.05
4.83		13	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.42	1.0	1.0	1.0	1.0	0.1	-0.05
2.95		14	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.04	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.99
3.23		15	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	-0.03	-0.05	-0.05	-0.05	-0.05	0.99	1.0	

Figure 5.39 – Matrice de covariance « a posteriori » du  $^{103}\text{Rh}$  implémentée dans l'outil RIB

Sur la base des dernières mesures effectuées à l'IRMM (Brusegan, 2004) ainsi des données expérimentales de la littérature présentes dans la base EXFOR (Macklin, 1979, Haste, 1975), il a également été envisagé de produire une matrice de covariance « a priori » de la capture du  $^{103}\text{Rh}$  par marginalisation rétroactive avec CONRAD comme cela a été entrepris pour le  $^{149}\text{Sm}$ .

Les réductions d'incertitudes obtenues grâce à la prise en compte des informations fournies par les programmes d'oscillations réalisés dans MINERVE par le biais du code RDN, aussi bien dans le cas du  $^{149}\text{Sm}$  que du  $^{103}\text{Rh}$ , sont suffisamment importantes pour que l'on puisse conclure à leur indépendance vis-à-vis des données « a priori ».

Grâce à l'élaboration de ces deux nouvelles matrices de covariance associées à l'évaluation JEFF-3.1.1 et relatives à la section de capture de ces deux principaux produits de fission considérés dans la problématique CBU REP-MOX, l'incertitude associée à leur effet en réactivité va pouvoir être déterminée sur la base de calculs de sensibilité réalisés par la Méthode des Expériences Intégrales. Le processus sera identique à celui utilisé pour le  $^{155}\text{Gd}$  qui dispose déjà d'une telle matrice dans la bibliothèque COMAC V0. Il faut noter que pour ces trois isotopes l'écart C/E dans les expériences MINERVE est nul, ce qui signifie que l'écart C/E transposé aux applications de sûreté-criticité est lui même nul ; seule l'incertitude doit donc être transposée, ce qui revient à propager l'incertitude des données nucléaires en utilisant les nouvelles covariances associées à l'évaluation JEFF-3.1.1. Pour les autres produits de fission, le Tableau 5.47 regroupe les facteurs de pénalité déduits de l'interprétation des oscillations d'isotopes séparés dans le cadre du programme CBU. Ceux-ci prennent en compte l'incertitude expérimentale totale associée aux mesures réalisées dans le réacteur MINERVE.



Produit de fission	(C/E-1)+1,65 $\sigma$ (%)	Facteur de pénalité
<sup>95</sup> Mo	5,0	0,96
<sup>99</sup> Tc	17,7	0,85
<sup>101</sup> Ru	2 $\sigma$	0,71
<sup>103</sup> Rh	Déterminé par RIB	
<sup>109</sup> Ag	12,0	0,89
<sup>133</sup> Cs	22,4	0,82
<sup>143</sup> Nd	11,7	0,90
<sup>145</sup> Nd	24,5	0,80
<sup>147</sup> Sm	27,5	0,78
<sup>149</sup> Sm	Déterminé par RIB	
<sup>150</sup> Sm	2 $\sigma$	0,83
<sup>151</sup> Sm	2 $\sigma$	0,93
<sup>152</sup> Sm	14,7	0,87
<sup>153</sup> Eu	1,3	0,99
<sup>155</sup> Gd	Déterminé par RIB	

**Tableau 5.47 – Facteurs de pénalité issus de la qualification de l’effet en réactivité des produits de fission dans MINERVE d’un combustible REP-MOX**

Les facteurs de pénalité liés aux données nucléaires de JEFF-3.1.1 associés aux isotopes <sup>101</sup>Ru, <sup>150</sup>Sm et <sup>151</sup>Sm non oscillés dans MINERVE proviennent directement des incertitudes sur les données nucléaires (deux écarts-types ont été adoptés).

Aussi bien dans le cas de la section de capture du <sup>149</sup>Sm que dans celui du <sup>103</sup>Rh, la réduction d’incertitude associée, obtenue par ré-estimation des données nucléaires avec le code RDN sur la base des programmes d’oscillations dans le réacteur MINERVE, souligne la complémentarité entre expériences intégrales et mesures différentielles et en particulier la pertinence de ces programmes.

### 5.5.3 Application à l’étude du cas d’un assemblage MOx

Afin de réaliser une première étude de représentativité de l’empoisonnement des trois principaux produits de fission du CBU REP-MOX mesuré dans le réacteur MINERVE, une application assemblage MOx AFA a été choisie.

#### 5.5.3.1 Etude de sensibilité du $k_{\text{eff}}$ aux sections efficaces

La mise en application de la théorie de la représentativité et de la transposition nécessite de disposer des vecteurs de sensibilité de l’expérience et de l’application sélectionnées. Dans le cadre de cette étude, ces vecteurs de sensibilité sont obtenus à l’aide de la théorie standard des perturbations au premier ordre pour le  $k_{\text{eff}}$  grâce au module SENSIB : d’APOLLO-2. Le calcul des coefficients de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture des produits de fission étudiés dans le massif MELODIE du réacteur MINERVE a nécessité l’ajout du module SENSIB : d’APOLLO-2 dans la procédure de calcul de flux et de flux adjoint du formulaire d’interprétation PIMS. L’assemblage MOx étudié en tant qu’application est à température ambiante et en milieu infini. La Figure 5.40 présente les coefficients de sensibilité à la capture, à la fission, à la diffusion et à la multiplicité pour les principaux actinides et produits de fission intéressant notre problématique pour l’assemblage neuf et pour un taux de combustion de 50 GWj/t sans refroidissement. Le  $k_{\text{eff}}$  apparaît particulièrement sensible aux données nucléaires du <sup>239</sup>Pu, du <sup>241</sup>Pu ainsi qu’à la capture résonnante de l’<sup>238</sup>U. Concernant les produits de fission, il apparaît sensible à la capture du <sup>149</sup>Sm, du <sup>103</sup>Rh et du <sup>155</sup>Gd avec des coefficients de sensibilité de l’ordre de 10 pcm/%.



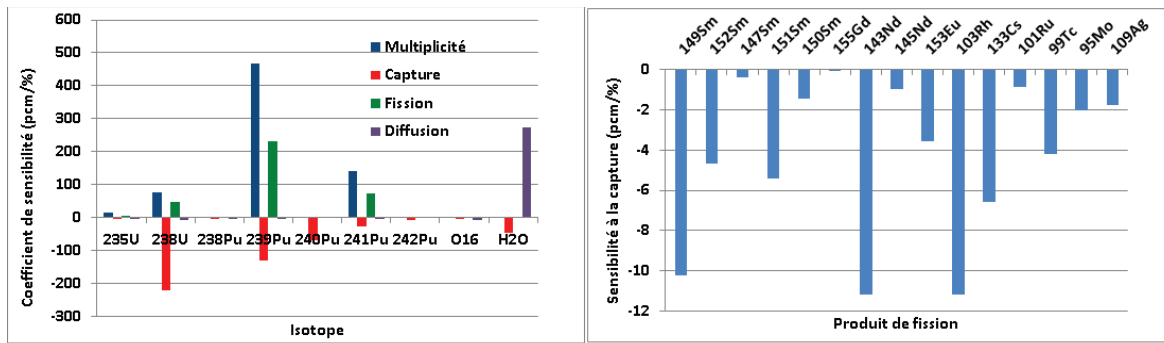


Figure 5.40 – Sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  aux différentes réactions des principaux isotopes du CBU REP-MOX - 50 GWj/t TR=0

De plus, la sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à leur section de capture apparaît proportionnelle au premier ordre à leur concentration. Le durcissement du spectre provoque un accroissement de l'absorption de l' $^{238}\text{U}$  et du  $^{240}\text{Pu}$  dans les résonances, ce que montre notamment la Figure 5.41.

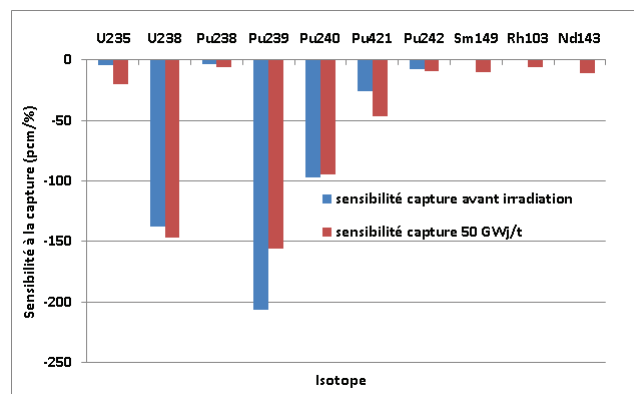


Figure 5.41 – Evolution de la sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la section de capture des principaux isotopes du CBU REP-MOX

La Figure 5.42 présente les flux calculés dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE ainsi que dans l'assemblage.

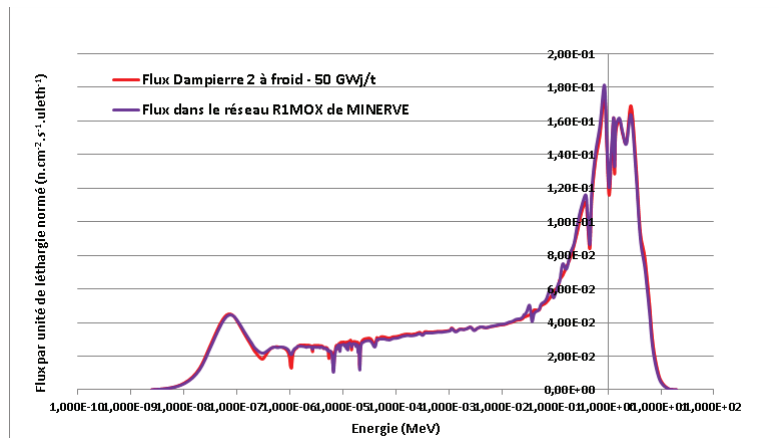


Figure 5.42 – Flux dans le réseau R1MOX et dans un assemblage MOx Dampierre 2 à froid - 50 GWj/t, fin d’irradiation

Le réseau R1MOX reproduit bien les caractéristiques spectrales d’un réseau REP-MOX.

### 5.5.3.2 Facteur de représentativité par rapport aux expériences d’oscillation MINERVE

L’outil RIB dispose désormais des matrices de covariances associées au  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{103}\text{Rh}$  et au  $^{155}\text{Gd}$  ainsi que des profils de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  du réseau du réacteur MINERVE à la capture des principaux produits de fission. Les coefficients de représentativité de leurs empoisonnements respectifs ont ainsi pu être déterminés. Ils sont regroupés dans le Tableau 5.48.

Echantillon oscillé	Sm9	SmNAT	RH - MAESTRO	RhC1	Gd5
Réseau	R1MOX	R1MOX	R1UO2	R1MOX	R1MOX
Coefficient de représentativité	0,99968	0,99971	0,72716	0,99703	0,99974

Tableau 5.48 – Coefficients de représentativité de l’empoisonnement des principaux produits de fission du CBU REP-MOx dans le réseau du réacteur MINERVE par rapport à une application assemblage MOX AFA - 50 GWj/t, TR=0

On y constate que l’application de la Méthode des Expériences Intégrales confirme la bonne représentativité des expériences d’oscillations d’isotopes séparés menées dans le réacteur MINERVE en particulier pour les isotopes  $^{149}\text{Sm}$  et  $^{155}\text{Gd}$ , dont les profils de sensibilité comparés entre l’expérience et l’application sont présentés Figures 5.43 et 5.44, avec des coefficients de représentativité supérieurs à 0,99.

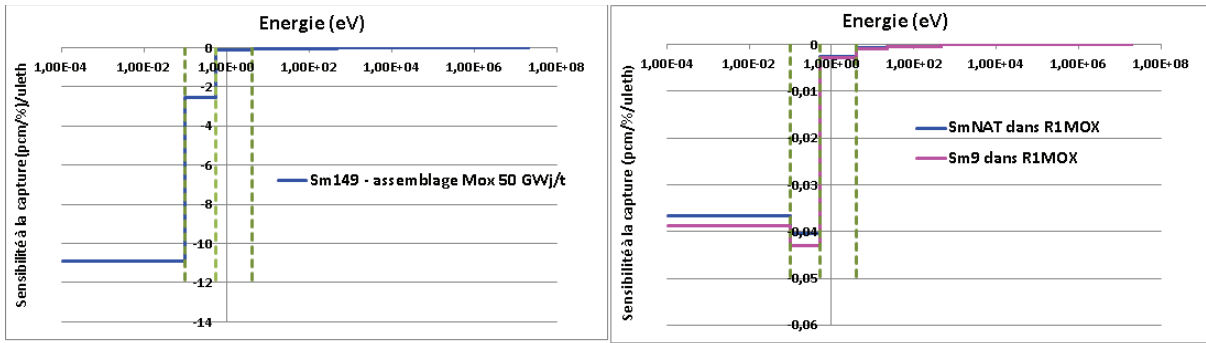


Figure 5.43 – Comparaison des profils de sensibilité du  $k_{eff}$  à la capture du  $^{149}\text{Sm}$  - échantillons Sm9 et SmNAT dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE (à droite) et assemblage REP-MOx Dampierre-2, TC=50 GWj/t, TR=0 (à gauche)

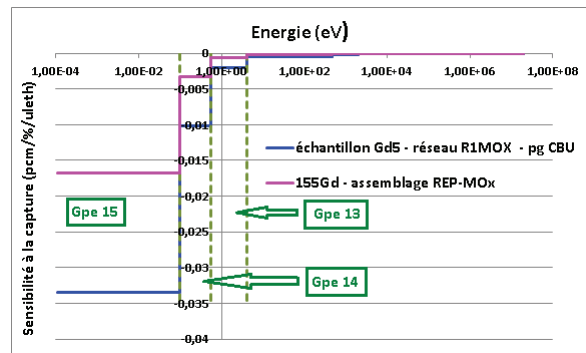


Figure 5.44 – Comparaison des profils de sensibilité du  $k_{eff}$  à la capture du  $^{155}\text{Gd}$  - échantillon Gd5 dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE (à droite) et assemblage REP-MOx Dampierre-2, TC=50 GWj/t, TR=0 (à gauche)

Les profils obtenus pour ces deux isotopes sont semblables pour l'expérience d'oscillation et l'application assemblage. Le  $k_{eff}$  est particulièrement sensible à leur capture dans le groupe 15, groupe le plus thermique du maillage énergétique JEF-15. Ces deux produits de fission sont en effet des poisons thermiques comme l'indiquent les tracés de leurs sections de capture présentés respectivement Figures 5.45 et 5.46.

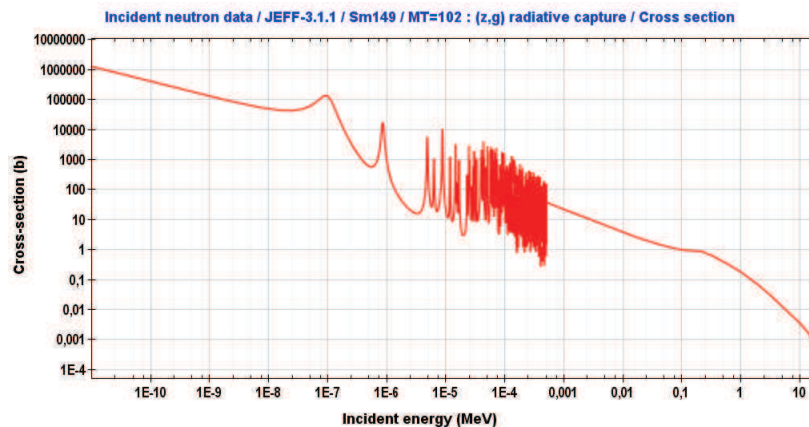
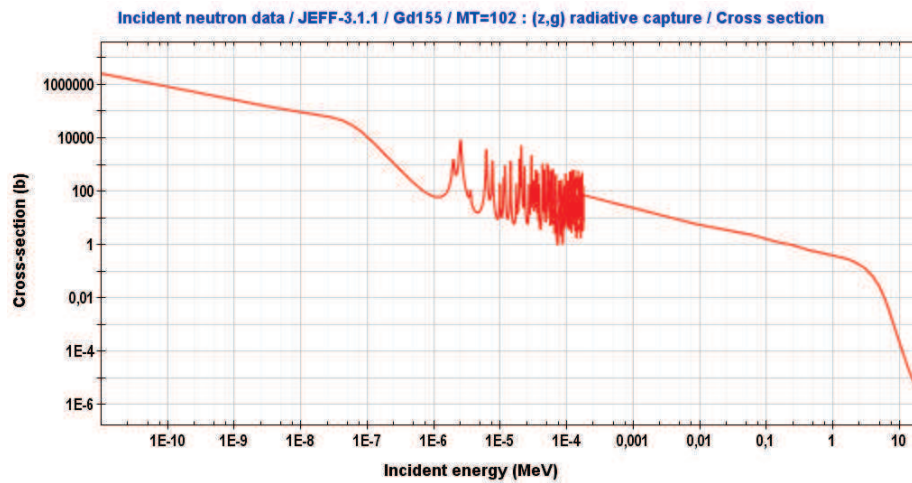
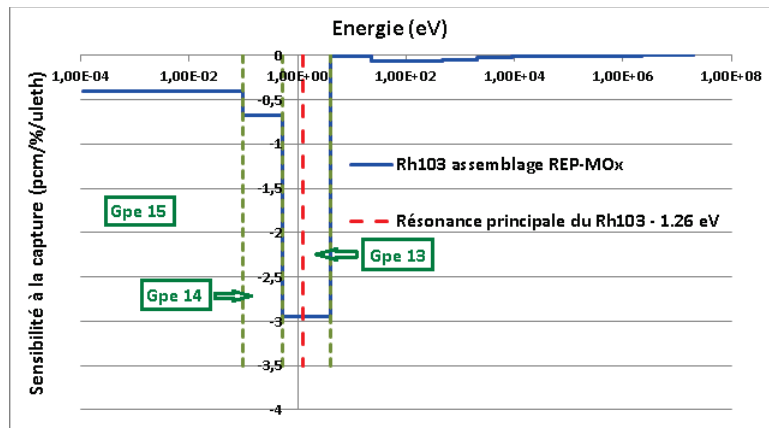


Figure 5.45 – Section de capture du  $^{149}\text{Sm}$  - évaluation JEFF-3.1.1

Figure 5.46 – Section de capture du  $^{155}\text{Gd}$  - évaluation JEFF-3.1.1

Concernant en revanche le  $^{103}\text{Rh}$ , le coefficient de représentativité entre l'empoisonnement lui étant dû dans l'expérience d'oscillation et dans l'application assemblage est très bon dans le cas de l'oscillation de l'échantillon RhC1 dans le réseau R1MOX durant le programme CBU mais moins satisfaisant dans le cas de l'oscillation du nouvel échantillon métallique RH oscillé dans le réseau R1UO2 lors du programme MAESTRO. Le  $^{103}\text{Rh}$ , contrairement au  $^{149}\text{Sm}$  et au  $^{155}\text{Gd}$ , n'est pas uniquement un poison thermique mais possède une résonance principale à 1,26 eV, identifiée Figure 5.36. Afin d'expliquer cette différence entre les résultats fournis par RIB, cette résonance a été mise en évidence sur les tracés des profils de sensibilité à la capture de cet isotope obtenus lors de l'interprétation de ces deux programmes expérimentaux (Figures 5.48 et 5.49) et pour celui obtenu dans le cadre de l'application assemblage REP-MOX choisie (Figure 5.47).

Figure 5.47 – Profil de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture du  $^{103}\text{Rh}$  - assemblage REP-MOX Dampierre-2, TC=50 GWj/t, TR=0

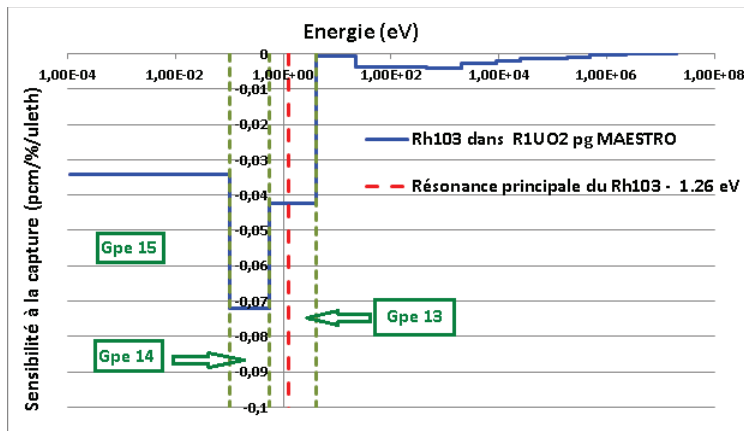


Figure 5.48 – Profil de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture du  $^{103}\text{Rh}$  dans le réseau R1MOX du réacteur MINERVE - Programme CBU

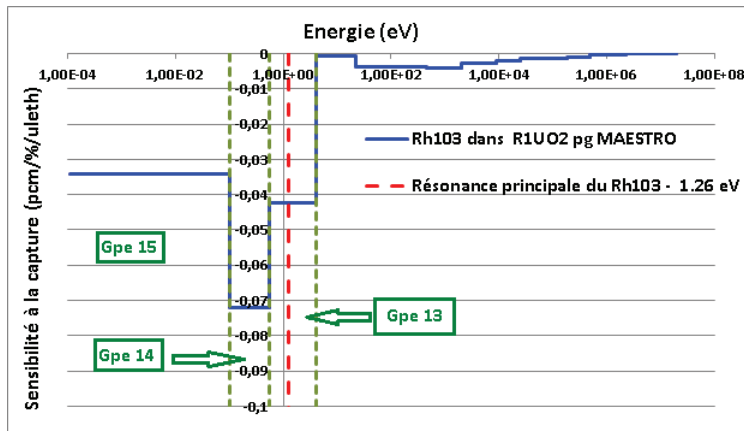


Figure 5.49 – Profil de sensibilité du  $k_{\text{eff}}$  à la capture du  $^{103}\text{Rh}$  dans le réseau R1UO2 du réacteur MINERVE - Programme MAESTRO

En comparant ces trois profils, on constate la similarité de ceux obtenus pour l'application et l'oscillation de l'échantillon RhC1 dans le réseau R1MOX : la résonance principale du  $^{103}\text{Rh}$  à 1,26 eV emporte la majorité du taux de capture de l'isotope, ce qui n'est pas le cas, nous l'avons montré au paragraphe 5.5.2.3, dans le cadre de l'oscillation de l'échantillon RH du programme MAESTRO, mesure confirmant la pertinence de l'évaluation JEFF-3.1.1 quant à la valeur de sa section de capture. Dans ce dernier cas, les groupes 14 et 15, plus thermiques, jouent un rôle prépondérant, ce qui explique ce plus faible coefficient de représentativité de 0,74 par rapport à l'application assemblage.

## 5.6 Conclusion

Afin de mettre en œuvre une méthodologie pertinente permettant de prendre en compte le Crédit Burn-up pour les assemblages combustibles de type REP-MOX, l'évaluation des biais liés à l'effet en réactivité des isotopes retenus est un point essentiel. L'évaluation du poids en réactivité des actinides retenus a fait l'objet de part le monde de nombreux programmes expérimentaux et en particulier de nombreux benchmarks de l'ICSBEF parmi lesquels nous avons retenu sept configurations MIX-COMP-THERM (réseaux UO2-PUO2)

aux compositions isotopiques les plus proches de celles d'un assemblage MOx AFA typique en vue d'obtenir, par la Méthode des Expériences Intégrales basée sur la re-estimation des données nucléaires et la théorie de la représentativité et de la transposition, le biais et l'incertitude associée sur le  $k_{\text{eff}}$  d'une application REP-MOX choisie liée aux principaux isotopes présents dans le combustible :  $^{235,238}\text{U}$ ,  $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$  et d'en déduire une pénalité à lui appliquer. Les pénalités à appliquer à l'effet en réactivité des autres actinides considérés dans la méthodologie CBU REP-MOX ont été évaluées soit sur la base des résultats de qualification de leurs sections efficaces de capture issus de l'interprétation du programme d'oscillation OSMOSE réalisé dans le réacteur MINERVE du CEA Cadarache, soit sur la base de valeurs d'incertitudes liées à ces mêmes sections fournies par la littérature.

A contrario, concernant l'évaluation de l'antiréactivité des produits de fission, peu de programmes expérimentaux ont été réalisés et leurs résultats sont le plus souvent confidentiels. Cependant, nous avons à notre disposition ceux de l'interprétation de deux programmes tout à fait pertinents menés dans le réacteur MINERVE au CEA Cadarache dans le cadre de la qualification des sections efficaces (n, $\gamma$ ) des 15 produits de fission sélectionnés dans le cadre du Crédit Burn-up. Il s'agit des programmes CBU et MAESTRO réalisés par la technique dite d'oscillation. Ces programmes présentent les intérêts suivants :

- ils ont été réalisés dans des réseaux représentatifs des applications REP-UOx (réseau R1UO2) et REP-MOX (réseau R1MOX utilisé dans le cadre du programme dédié CBU). Disposer de résultats obtenus dans différents réseaux permet en effet de pouvoir disposer de tendances quant aux données nucléaires des isotopes ;
- des isotopes séparés ont été oscillés ;
- les tendances dégagées quant aux données nucléaires des isotopes sont a priori directement transposables à l'isotope considéré ;
- la technique d'oscillation utilisée est particulièrement bien adaptée à la mesure de faibles effets en réactivité ( $10 \text{ pcm} \pm 0,02 \text{ pcm}$ ).

L'interprétation de ces expériences a été réalisée avec le formulaire dédié PIMS développé au SPRC et basé sur les recommandations du schéma de calcul SHEM-MOC et la Théorie des Perturbations. Ceci constitue une mise à jour des schémas de calcul pour la criticité et en particulier pour les applications Crédit Burn-up. De par les outils et méthodes implémentés dans ce formulaire, les biais de calcul sont désormais quantifiés et réduits de manière à permettre l'obtention d'informations directes sur les données nucléaires. Les résultats de ces interprétations conduisent aux constatations suivantes, récapitulées dans le Tableau 5.49 et la Figure 5.50 :

- la section de capture de l' $^{153}\text{Eu}$  semble sous-estimée de 4% ;
- la section de capture des  $^{149}\text{Sm}$  et  $^{152}\text{Sm}$ , du  $^{155}\text{Gd}$ , du  $^{143}\text{Nd}$  et de l' $^{109}\text{Ag}$  est bien évaluée ;
- la section de capture du  $^{145}\text{Nd}$  (+17%) semble fortement surestimée, ce qui n'a pas été observé dans le réseau R1UO2 ;
- les sections de capture du  $^{99}\text{Tc}$  et du  $^{133}\text{Cs}$  sont surestimées d'environ 10% ;
- la forte surestimation de la section de capture du  $^{103}\text{Rh}$  (+12%) observée lors du programme CBU est à modérer du fait de la technique de mise en solution employée qui induit d'importantes incertitudes analytiques. Cette tendance a été infirmée par l'expérience MAESTRO.

Isotope	C/E-1 (%) R1MOX
<sup>149</sup> Sm	-0,9 ± 3,7
<sup>147</sup> Sm	13,1 ± 8,7
<sup>152</sup> Sm	6,8 ± 4,8
<sup>nat</sup> Sm	3,6 ± 4,6
<sup>143</sup> Nd	4,8 ± 4,2
<sup>145</sup> Nd	17,7 ± 4,1
<sup>nat</sup> Nd	3,6 ± 5,8
<sup>nat</sup> Nd	10,0 ± 7,5
<sup>109</sup> Ag	4,6 ± 4,5
<sup>nat</sup> Ag	17,1 ± 4,5
<sup>nat</sup> Mo	-1,6 ± 4,0
<sup>nat</sup> Ru	34,7 ± 5,0
<sup>153</sup> Eu	-4,5 ± 3,5
<sup>99</sup> Tc	10,9 ± 4,1
<sup>155</sup> Gd	-0,2 ± 4,0
<sup>103</sup> Rh	12,0 ± 4,0
<sup>133</sup> Cs	10,0 ± 7,5

**Tableau 5.49 – Ecarts C/E-1 (%) par produit de fission dans le réseau R1MOX - calculs effectués avec l'évaluation JEFF-3.1.1**

De manière générale, on observe dans R1MOX une surestimation de la capture de l'ensemble des produits de fission du CBU comme l'illustre la Figure 5.50. Les conclusions de cette interprétation peuvent dorénavant être utilisées pour la prise en compte « industrielle » du Crédit Burn-up. Il est à noter qu'aucune tendance n'a pu être obtenue sur l'empoisonnement individuel des isotopes <sup>150</sup>Sm, <sup>151</sup>Sm et <sup>101</sup>Ru (représentant 18.6% de l'empoisonnement des 15 PF sélectionnés à 20 GWj/t). En effet, l'essentiel de la capture d'un échantillon dopé <sup>150</sup>Sm risquant d'être due au <sup>149</sup>Sm résiduel (comme dans le cas de l'échantillon Sm7) aucun échantillon n'a été fabriqué pour ce produit de fission. Concernant le <sup>151</sup>Sm, sa demi-vie est trop courte pour permettre la fabrication d'un échantillon. Aucune donnée n'a donc pu être obtenue pour cet isotope.

Concernant le <sup>101</sup>Ru présent dans l'échantillon Runat, il est aussi absorbant que le <sup>99</sup>Ru, ce qui empêche l'interprétation du résultat obtenu.

Le programme MAESTRO, au cours duquel un nouvel échantillon métallique de rhodium pur a été oscillé afin de s'affranchir des effets de granulométrie des échantillons sur matrice combustible, confirme quant à lui la qualité de l'évaluation JEFF-3.1.1 pour la capture du <sup>103</sup>Rh avec un écart calcul-expérience de 0,4 % ± 1,9 % et est en accord avec les dernières mesures microscopiques effectuées à l'IRMM. Suite à la réalisation de ces programmes d'oscillation et au vu des résultats obtenus, de nouvelles perspectives sont envisagées en vue de leur amélioration comme effectuer de nouvelles oscillations d'un échantillon de <sup>147</sup>Sm, par exemple muni d'un filtre Cadmium, pour annuler la contribution du <sup>149</sup>Sm à son antiréactivité, de nouveaux échantillons dopés <sup>133</sup>Cs ainsi que de nouveaux échantillons dopés respectivement <sup>99</sup>Ru et <sup>101</sup>Ru.

De plus, du fait de la mise en évidence pour certains échantillons d'une augmentation des écarts calcul-expérience avec le durcissement du flux, l'utilisation de nouveaux échantillons de calibration contenant de l'or pourrait également permettre de vérifier la justesse du calcul du flux dans le domaine épithermique.

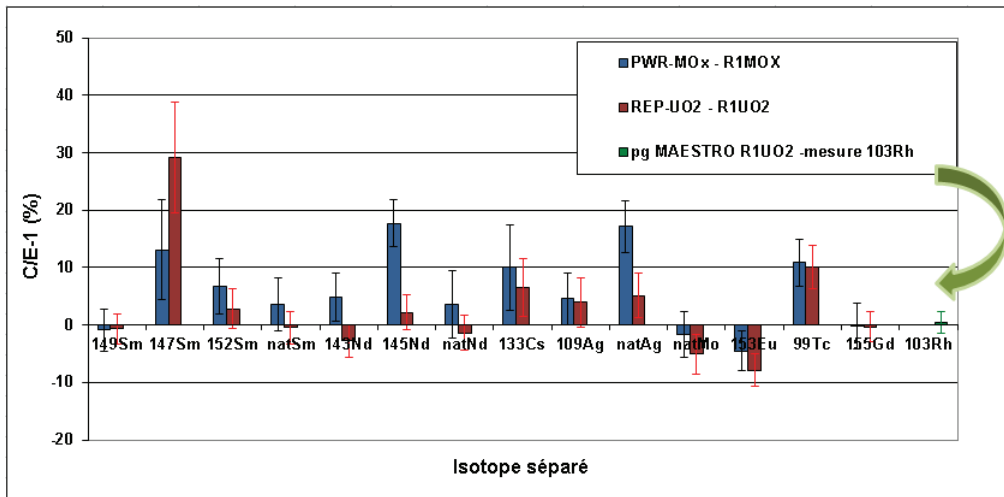


Figure 5.50 – Ecarts C/E-1 (en %) des isotopes dopants étudiés dans le cadre du programme CBU dans R1UO2 et R1MOX – calculs JEFF-3.1.1

Le Tableau 5.50, ci-dessous, présente la synthèse des options du schéma d'interprétation retenues afin de répondre à la problématique Crédit Burn-up et de leur impact.

Paramètres étudiés	Impact- Schéma d'interprétation
Bibliothèques de données nucléaires	JEF-2.2 /JEFF-3.1.1 : impact $^{99}\text{Tc}$ , $^{149}\text{Sm}$ , $^{143}\text{Nd}$ , $^{153}\text{Eu}$ , $^{103}\text{Rh}$ JEFF-3.1.1/ENDF/B-VII.V0 : surestimation capture thermique du $^{143}\text{Nd}$ dans R1MOX avec JEFF-3.1.1, $^{147}\text{Sm}$ et $^{152}\text{Sm}$ surestimation IR
Solveur de flux	MOC $\Delta r = 0.01$ , $N_{\phi}=24$ , $N_{\Psi}=2$
Méthode de calcul de la réactivité	TPE : décomposition de l'effet en $\rho$
Correction des effets 3D	<i>Effet spatial (correction de longueur) :</i> Impact significatif Compris entre -2.2% et 2% selon la longueur de l'échantillon <i>Effet spectral (présence des rondins d'aluminium) :</i> Varie en fonction de la teneur en dopant et de la nature du support, de -0.3% à près de 2%
Impact des fuites représentées par un terme d'absorption supplémentaire dans APOLLO2	Négligeable
Autoprotection des isotopes séparés	PF impactés : $^{95}\text{Mo}$ , $^{145}\text{Nd}$ , $^{133}\text{Cs}$ , $^{99}\text{Tc}$ , $^{152}\text{Sm}$ En dessous de 22 eV : impact pour $^{147}\text{Sm}$ , $^{145}\text{Nd}$ , plus faible pour $^{153}\text{Eu}$ , $^{109}\text{Ag}$
Impact des impuretés	Dopant contributeur presque exclusif à l'effet en $\rho$ (sauf pour Sm7, Sm2 et Nd5) H2O impureté d'importance majeure pour les échantillons Césium
Coefficient de calibration	Calculé par méthode Monte-Carlo pour prise en compte des incertitudes
Discretisation de l'échantillon	4 couronnes suffisent

Tableau 5.50 – Schéma d'interprétation - Synthèse des impacts



Ces résultats d'interprétation peuvent être directement utilisés dans le but d'appliquer une pénalité sur l'effet en réactivité de chacun des produits de fission considérés. Cependant, pour les trois principaux ( $^{149}\text{Sm}$ , le  $^{103}\text{Rh}$  et le  $^{155}\text{Gd}$ ) la mise en œuvre de la Méthode des Expériences Intégrales a été privilégiée. La présentation de cette méthodologie débutant ce chapitre a montré la nécessité de disposer des matrices de variance-covariance pour les isotopes auxquels elle s'applique. C'est pour cela qu'ont été menés des développements spécifiques de l'outil RIB dans lequel elle a été implémentée afin de mettre à jour les matrices existantes liées aux principaux actinides et de pouvoir importer des données relatives aux produits de fission du CBU REP-MOX. Ainsi, les données de covariance associées à l'évaluation JEFF-3.1.1 de la bibliothèque COMAC V0 développée au SPRC/LEPh pour la capture, la fission, la diffusion et la multiplicité y ont été importées pour les isotopes  $^{235,238}\text{U}$ ,  $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  et  $^{155}\text{Gd}$ . Les corrélations inter-réactions pour un même isotope sont désormais considérées.

Aucune donnée de covariance n'étant disponible dans COMAC V0 pour les isotopes  $^{149}\text{Sm}$  et  $^{103}\text{Rh}$  un important travail a été réalisé afin de produire des matrices de covariance réalistes associées à leur capture sur la base de données de covariance a priori issues de l'évaluation américaine ENDF/B-VII.V1, largement utilisée dans le monde, et des résultats d'interprétation des programmes d'oscillation CBU et MAESTRO à l'aide du code de ré-estimation des données nucléaires RDN. Le retour sur les données nucléaires permis par ces programmes a permis de réduire les incertitudes a priori liées aux sections de capture de ces deux isotopes d'un facteur deux, ce qui montre que cette réduction est indépendante des données a priori retenues. Grâce à l'ensemble de ces travaux, l'évaluation des biais et incertitudes associés à l'évaluation JEFF-3.1.1 liés à l'effet en réactivité des actinides et produits de fission pour une application CBU REP-MOX est désormais possible.

## Mise en oeuvre du CBU dans les applications REP-MOx : bibliographie

- [APPLI-1] L. SAN FELICE, A. SANTAMARINA, C. RIFFARD, F. RIOU, M. LEIN, M. TARDY, *BUC implementation for a transport cask application using penalty terms from French experiments*, Proceedings of Int Conf GLOBAL2009, Paris, France, September 6-11, 2009
- [APPLI-2] C. VENARD, A. SANTAMARINA, *Calculation error and uncertainty due to Nuclear Data. Application to MOx Fissile Media*, Proceedings of Int Conf NCSO 2005, Knoxville, USA, September 19-22, 2005
- [APPLI-3] A. GANDINI, *On transposition of experimental reactor data to reference design*, Technical report, Comitato nazionale per la ricerca e per lo sviluppo dell'energia nucleare e delle energie alternative, 1983.
- [APPLI-4] V.V ORLOV, *Problems of Fast Reactor Physics Related to Breeding*, At. Energy Rev., p 991–1075, 1980.
- [APPLI-5] N. DOS SANTOS, P. ARCHIER, P. BLAISE, A. SANTAMARINA, *Impact of the Mock-up Experimental Correlations and Technics Uncertainties in the Transposition Process*, Proc of Int Conf ANIMMA - 2013, Marseille, France, June 23-27, 2013
- [APPLI-6] T. IVANOVA ET AL., *OECD/NEA Expert Group on Uncertainty Analysis for Criticality Safety Assessment : Current Activities*, Proc of Int Conf PHYSOR 2010, Pittsburgh, USA, May 9-14, 2010
- [APPLI-7] A. CHAMBON, A. SANTAMARINA, C. RIFFARD, F. LAVAUD, D. LECARPENTIER, *Needs of reliable nuclear data and covariance matrices for Burnup Credit in JEFF-3 library*, Proc of Int Workshop WONDER 2012, Aix-en-Provence, France, September 25-28 (2012)
- [APPLI-8] C. VENARD, A. SANTAMARINA, A. LECLAINCHE, C. MOUNIER, *The RIB tool for the determination of computational bias and associated uncertainty in the CRISTAL criticality-safety package*, Proceedings of Int Conf NCSO 2009, Richland, USA, 2009
- [APPLI-9] H. HENRIKSSON, O. SCHWERER, D. ROCHMAN, M. V. MIKHAYLYUKOVA and N. OTUKA, *The art of collecting experimental data internationally : EXFOR, CINDA and the NRDC network*, Proc of Int Conf ND, 2007
- [APPLI-10] DE SAINT-JEAN, P. ARCHIER, G. NOGUERE, O. LITAIZE, C. VAGLIO, D. BERNARD, O. LERAY, *Estimation of multi-group cross section covariances of  $^{238,235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{56}\text{Fe}$ ,  $^{23}\text{Na}$  and  $^{27}\text{Al}$* , Proc of Int Conf PHYSOR 2012, Knoxville, USA, April 15-20, 2012.
- [APPLI-11] K. SHIBATA, *Present status of JENDL4*, in JAEA-Conf 2009-004, p13-18, 2009
- [APPLI-12] A. COURCELLE, A. SANTAMARINA, F. BOCQUET, G. COMBE, C. MOUNIER, G. WILLERMOZ, *JEF2.2 Nuclear Data Statistical Adjustment Using Post-Irradiation Experiments*, Proc of Int Conf PHYSOR 2004, Chicago, USA, April 25-29, 2004
- [APPLI-13] L. CARRARO, Y. DEVILLE, Communication personnelle, 1997
- [APPLI-14] A. SANTAMARINA ET AL., *Re-estimation of Nuclear Data and JEFF3.1.1 Uncertainty Calculations*, Proc of Int Conf PHYSOR 2012, Knoxville, USA, April 15-20, 2012
- [APPLI-15] C. DE SAINT-JEAN ET AL., *Status of CONRAD, a nuclear reaction analysis tool*, Proceedings of Int Conf on Nuclear Data for Science and Technology, Nice, France, 22-27 April, 2007
- [APPLI-16] C. SAGE, *Mesures des sections efficaces totale et (n,2n) sur  $^{241}\text{Am}$* , Thèse de Doctorat, Université de Strasbourg, 2009

- [APPLI-17] J.M GOMIT, J. MISS, A. AGGERY, C. MAGNAUD, J.C TRAMA, C. RIFFARD, *CRISTAL Criticality Package, Twelve years later and new features*, Proceedings of Int Conf ICNC, Edinburgh, UK, 19-22 September, 2011
- [APPLI-18] D. BERNARD ET AL., *Validation of actinides nuclear cross-section using pile-oscillation experiments performed at MINERVE facility*, Proc of Int Conf on Nuclear Data for Science and Technology, Jeju Island, Korea, April 26-30, 2010
- [APPLI-19] P. LECONTE, Communication personnelle
- [APPLI-20] B. ROQUE, A. SANTAMARINA, N. THIOLLAY, *Burnup credit calculation route for PWR-MOX assemblies and experimental validation in MINERVE RIMOX et SLB1 PIE*, Proceedings of Int Conf ICNC, Versailles, France, 1999
- [APPLI-21] A. SANTAMARINA, N. THIOLLAY, C. HEULIN, J.P. CHAUVIN, *The French Experimental Programme on Burnup Credit*, Proc. Top. Meeting on Criticality Safety Challenges, NCSD 1997, Chelan (WA), USA, September 7-11, 1997
- [APPLI-22] P. BAETEN ET AL., *The REBUS experimental programme for Burnup Credit*, Proc of Int Conf ICNC, Tokai, Japan, October 20-24, 2003
- [APPLI-23] F. JATUFF ET AL., *The LWR-PROTEUS phase II programme : first criticality and planned experiments*
- [APPLI-24] N. LECLAIRE, T. IVANOVA, E. LETANG, E. GIRAULT, J.F THRO, *Fission Product Experimental Program : Validation and Computational Analysis*, in Journal of Nuclear Science and Technology, vol. 161, n° 2, p188-215, 2009
- [APPLI-25] K. TONOIKE ET AL., *Benchmark Critical Experiments and FP Worth Evaluation for a Heterogeneous System of Uranium Fuel Rods and Uranium Solution Poisoned with Pseudo-Fission-Products Elements*, in Journal of Nuclear Science and Technology, **Vol 46**, n° 4, p354-365, 2009
- [APPLI-26] M. ANTONY, A. PEPINO, J. DI SALVO, J.P HUDELOT, Communication CEA, 2011
- [APPLI-27] A. SANTAMARINA, P. ALBAREDE ET AL., *Experimental validation of Burnup Credit calculation by Reactivity Worth Measurements in MINERVE Reactor*, Proc. Int. Conf. on Nuclear Criticality Safety (ICNC'95), Albuquerque, USA, September 17-21, 1995
- [APPLI-28] B. ROQUE, A. SANTAMARINA, N. THIOLLAY, *Burnup credit calculation route for PWR MOx assemblies and experimental validation in MINERVE RIMOX et SLB1 PIE*, IAEA Technical Meeting TCM 2002, Madrid, April 22-26, 2002
- [APPLI-29] A. GRUEL, *Développement et validation de schémas de calcul dédiés à l'interprétation des mesures par oscillation pour l'amélioration des données nucléaires*, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, 2011
- [APPLI-30] R. SANCHEZ ET AL., *APOLLO2 Year 2010*, in Journal of Nuclear Engineering and Technology, **Vol 42**, n° 5, 2010
- [APPLI-31] A. SANTAMARINA ET AL., *APOLLO2.8 : a validated code package for PWR neutronics calculations*, Proc of Int Conf ANFM, Hilton Head Island, USA, April 12-15, 2009
- [APPLI-32] A. SANTAMARINA, *The JEFF-3.1.1 library for accurate criticality-safety calculations*, Proceedings of Int Conf ICNC2011, Edinburgh, UK, 19-22 september, 2011
- [APPLI-33] A. SANTAMARINA ET AL., *JEFF-3.1.1, nuclear data library*, JEFF report 22, Validation results from JEF-2.2 to JEFF-3.1.1, OECD/NEA, 2009
- [APPLI-34] A. SANTAMARINA ET AL., *Advanced neutronics tools for BWR design calculations*, in Journal of Nuclear Engineering and Design, Volume 238, Issue 8, Pages 1965-1974, 2008

- [APPLI-35] S. PERRUCHOT-TRIBOULET, R. SANCHEZ, Communication CEA, 1997
- [APPLI-36] Z. STANKOVSKI, *Implementation of component concept in SILENE 2D/3D pre and post-processing GUI*, Proceedings of M&C, Monterey, USA, 2007
- [APPLI-37] P. REUSS, *Précis de neutronique*, collection Génie Atomique, EDP Sciences, 2003
- [APPLI-38] A. GRUEL ET AL., *Interpretation of Fission Product Oscillations in the MINERVE Reactor, from Thermal to Epithermal Spectra*, in Journal of Nuclear Science and Engineering, **169**, 229–244, 2011
- [APPLI-39] M. SALVATOIRES, R. JACQMIN, *Uncertainty and target accuracy assesment for innovative systems using recent covariance data evaluations*, Technical report, Nuclear Energy Agency, 2008
- [APPLI-40] N. THIOLLAY ET AL., *Burnup credit for fission product nuclides in PWR (UO<sub>2</sub>) spent fuels*, Proc of Int Conf on Nuclear Criticality Safety (ICNC-99), Versailles, France, September 20-24, 1999
- [APPLI-41] N. HFAIEDH, *Nouvelle méthodologie de calcul de l'absorption résonnante*, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 2006
- [APPLI-42] A. BRUSEGAN ET AL., *Neutron capture and transmission measurements on <sup>103</sup>Rh down to thermal energies*, AIP Conference Proceedings, 769(1), p953-956, 2005
- [APPLI-43] P. LECONTE, Communication personnelle
- [APPLI-44] C. CARMOUZE, C. RIFFARD, A. SANTAMARINA, G. GRASSI, A. CHAMBON, *Full Burnup credit methodology for PWR UOx spent fuel assemblies*, in Journal of Nuclear Science and Engineering, *to be published*
- [APPLI-45] R.C. LITTLE ET AL., *Low-Fidelity Covariance Project*, Nuclear Data Sheets 109 (2008) 2828-2833
- [APPLI-46] M. HERMAN ET AL., *COMMARA-2.0 Neutron Cross Section Covariance Library*, BNL-94830-2011, 2011
- [APPLI-47] A.J KONING, D ROCHMAN, *TENDL-2009 : consistent TALYS-based Evaluated Nuclear Data Library including covariance data*, JEF-DOC 1310, 2009 I
- [APPLI-48] R.L BOWDEN, P.R THORNE, *Reactivity prediction calculation for infinite arrays of PWR MOx fuel pin cells*, Burnup Credit Criticality Benchmark, phase IV-A, OECD-NEA, 2003
- [APPLI-49] K. SHIBATA ET AL., *Japanese evaluated nuclear data library version 3 revision-3 : JENDL-3.3*, Journal of Nuclear science and Technology 12/2002 ; 39 :1125-1136.
- [APPLI-50] G. NOGUERE, P.ARCHIER, A. GRUEL, P. LECONTE, D. BERNARD, *Interpretation of pile-oscillation measurements by the integral data assimilation technique*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, vol 629, pp 288-295, 2011
- [APPLI-51] G. LEINWEBER ET AL., *Neutron Capture and Total Cross-Section Measurements and Resonance Parameters of Gadolinium*, in Journal of Nuclear Science and Engineering, **Vol 154**, n° 3, p261-279, 2006
- [APPLI-52] S.F MUGHABGHAB, *Atlas of Neutron resonances*, Elsevier, Amsterdam, 2006
- [APPLI-53] G. NOGUERE, J.C SUBLET, *A nuclear data oriented interface code for processing applications*, Annals of Nuclear Energy, 35, 2259-2269, 2008
- [APPLI-54] I. KODELI, E. SARTORI, *Neutron Cross-section Covariance Data in Multigroup Form and Procedure for Interpolation to Users' Group Structures for Uncertainty Analysis Applications*, Proc. of PHYSOR'90, Int. Conf. on the Physics of Reactors : Operation, Design and Computation, Marseille, PI-11 - PI-20, 23-27 April 1990, Marseille

[APPLI-55] A. CHAMBON, A. SANTAMARINA, G. NOGUERE, C. RIFFARD, F. LAVAUD, D. LECARPENTIER, *Feedback on nuclear data for separated Burnup Credit Fission Products oscillations in the MINERVE reactor with JEFF-3 library in PWR-MOx fuel criticality-Safety studies*, Proceedings of Int Conf NCSD 2013, Wilmington, NC, USA, September 29 - October 3, 2013

[APPLI-56] [http ://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm](http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor.htm)

[APPLI-57] R.L MACKLIN ET AL., *Neutron capture and total cross section of  $^{144}\text{Sm}$* , Physical review C, Vol 48, num 3, sept 1993

[APPLI-58] G. LEINWEBER ET AL., *Neutron Capture and Transmission Measurements and Resonance Parameter Analysis of Samarium*, Nuclear Science and Engineering : 142, p 1-21 (2002)

## Chapitre 6

# APPLICATION DE LA METHODOLOGIE DEVELOPEE AUX CAS INDUSTRIELS

*Les applications industrielles auxquelles nous nous intéresserons pour appliquer et évaluer la méthodologie développée seront un entreposage de combustible irradié en piscine et un château de transport. Une synthèse des hypothèses conservatives retenues sera tout d'abord présentée puis les pénalités permettant de prendre en compte les biais associés à l'effet en réactivité des isotopes considérés seront évaluées et appliquées au  $k_{eff}$  pour chacune de ces configurations ainsi que le gain associé à la mise en oeuvre de la méthodologie.*

### 6.1 Présentation des hypothèses associées aux différents cas étudiés

Les configurations « standard » suivantes, impliquant divers degrés de conservatismes, ont été étudiées pour les deux applications industrielles :

- La **configuration de référence** correspond à un entreposage ou un transport d'assemblages combustibles MOX AFA supposés neufs de teneur moyenne en plutonium. Pour chacune des deux applications, le zonage des assemblages combustibles MOx a été pris en compte. Pour chacune des trois zones représentées, les vecteurs plutonium considérés sont ceux des assemblages MOx irradiés dans le réacteur Saint-Laurent B1 (Tableau 6.1) pris en compte pour la qualification du formulaire DARWIN-2.3.

	Zone Centrale	Zone Intermédiaire	Zone Périphérique
<b>Teneur moyenne en Pu (en masse)</b>	5,636 %	4,420 %	2,913 %
<b>Isotopie Pu (% atomique)</b>			
<sup>238</sup> Pu	0,864 %	0,830 %	0,848 %
<sup>239</sup> Pu	66,709 %	66,781 %	66,688 %
<sup>240</sup> Pu	20,610 %	20,528 %	20,693 %
<sup>241</sup> Pu	7,544 %	7,545 %	7,448 %
<sup>242</sup> Pu	2,885 %	2,827 %	2,915 %
<sup>241</sup> Am	1,388 %	1,490 %	1,408 %

Tableau 6.1 – Vecteurs plutonium - assemblages MOx Saint-Laurent B1

- La **configuration dite « Best Estimate »** correspond au cas d'un entreposage ou d'un transport d'assemblages combustibles MOX AFA irradiés entre 15 et 45 GWj/t avec un refroidissement nul ou de



5 ans. Le bilan-matière est calculé en considérant les conditions réelles moyennes d'irradiation des assemblages Saint-Laurent B1 décrites (hors suivi de cycle) dans le Tableau 6.2.

Paramètre d'irradiation	Cas « Best estimate »
Température combustible	595 °C
Température modérateur	305 °C
Concentration en bore	528 ppm
Puissance spécifique	40 W/g
Barres de contrôle	Non insérées
Environnement de l'assemblage MOx	UOx 3,25% irradié à 24 GWj/t non barré

**Tableau 6.2 – Paramètres d'irradiation du calcul d'évolution des assemblages MOx AFA - Cas Best Estimate**

L'ensemble des isotopes de la chaîne d'évolution APOLLO-2.8 est pris en compte soit 157 isotopes (présentés Figure 2.1). Un profil de taux de combustion moyen fourni dans le Tableau 6.3, déterminé à partir de nombreuses mesures de profil réalisées en puits de burn-up à la Hague en amont de la chaîne de dissolution sur des combustibles UOx<sup>1</sup> sera considéré dans le cas de l'application au château de transport [INDUST-1] [INDUST-2]. Ces mesures de profil sont réalisées par spectrométrie gamma.

Cote (cm)	Profil Moyen
11	0,528
22	0,8
33	0,945
45	1,021
73	1,029
268	1,07
303	1,041
324	1,037
343	0,896
354	0,804
366	0,6

**Tableau 6.3 – Profil de taux de combustion moyen issu de mesures en puits de burn-up à l'usine de La Hague (combustible UOx)**

L'écart entre les valeurs de  $k_{eff}$  entre cette configuration et la configuration de référence permet de déterminer le CBU le plus représentatif de la réalité relatif à l'entreposage ou au transport des assemblages en fonction de leur taux de combustion et de leur temps de refroidissement. L'impact de la prise en compte d'un vecteur plutonium enveloppe sera étudié dans le cas de l'application de la méthodologie au château de transport.

- La **configuration conservative** correspond au cas d'un entreposage ou d'un transport d'assemblages combustibles MOX AFA irradiés entre 15 et 45 GWj/t avec un refroidissement nul ou de 5 ans. Le calcul du bilan-matière, correspondant aux seize actinides et quinze produits de fission retenus, est réalisé en considérant des conditions d'irradiation conservatives. Les facteurs correctifs définis au Chapitre 4 sont appliqués aux différentes concentrations en amont du calcul de criticité et les facteurs de pénalités définis au Chapitre 5 sont pris en compte sur la réactivité des actinides et des produits de fission.

1. Du fait du peu de mesures disponibles pour les combustibles REP-MOx actuellement non retraités.

Un profil de taux de combustion pénalisant en onze zones issu des recommandations CEA (Tableau 6.4) et déterminé à partir de mesures réalisées à La Hague sur des combustibles UOx sera également considéré dans le cas de l'application château de transport [INDUST-1] [INDUST-2]. L'écart entre les valeurs de  $k_{eff}$  entre cette configuration et la configuration de référence permet de déterminer le conservatisme associé en fonction du taux de combustion et du temps de refroidissement des assemblages.

Cote (cm)	BU assemblage $\geq 30$ GWj/t	BU assemblage $< 30$ GWj/t
11	0,52	0,49
22	0,79	0,79
33	0,96	0,95
45	1,04	1,07
73	1,05	1,03
H-98	1,089	1,116
H-63	1,05	1,03
H-42	1,01	0,98
H-23	0,83	0,74
H-12	0,66	0,55
H	0,48	0,33

**Tableau 6.4 – Profil de taux de combustion pénalisant issu de mesures en puits de burn-up à l'usine de La Hague (combustible UOx) en fonction de la cote H de l'assemblage considéré**

La prise en compte de ce profil axial de taux de combustion des assemblages REP est rendue nécessaire du fait du non-conservatisme du modèle peu physique consistant à considérer un « taux de combustion moyen uniforme » sur toute la hauteur de l'assemblage dès 30 GWj/t (flux de forme cosinus non-réaliste et non conservatif) et d'autre part car il permet d'étudier des situations accidentelles. Le Tableau 6.5 résume les hypothèses prises en compte dans le cadre du calcul d'évolution pour le cas conservatif.

Paramètre d'irradiation	Cas conservatif
Température combustible	700 °C
Température modérateur	330 °C
Concentration en bore	600 ppm
Puissance spécifique	40 W/g
Barres de contrôle	AIC insérées durant toute l'irradiation
Environnement de l'assemblage MOx	UOx irradié en coin MOx AFA 4,5% irradié à 15 GWj/t en face, non barrés

**Tableau 6.5 – Paramètres d'irradiation du calcul d'évolution des assemblages MOx AFA - cas conservatif**

Les calculs de criticité sont réalisés avec la voie TRIPOLI-4 du formulaire CRISTAL V2. Les calculs de sensibilité du  $k_{eff}$  aux différentes sections efficaces considérées des isotopes principaux du CBU ( $^{235,238}\text{U}$ ,  $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ) nécessaires à l'évaluation des biais relatifs à leur effet en réactivité par l'outil RIB sont réalisés grâce à la fonctionnalité PERTURBATION de TRIPOLI-4 (les deux applications et en particulier le château de transport nécessitant une description complète 3-D) basée sur la



méthode des échantillons corrélés. Lorsque l'un des paramètres d'entrée d'une simulation Monte-Carlo est perturbé (dans notre cas les sections efficaces de capture, de fission et de diffusion), les lois statistiques décrivant la propagation des particules (ici des neutrons) dans le milieu considéré sont modifiées. La méthode des échantillons corrélés, détaillée en **Annexe D**, consiste en la modification des différents poids associés aux événements de la simulation non perturbée et permet, même pour de très faibles perturbations pour lesquelles l'incertitude relative sur la variation de la grandeur d'intérêt tend vers l'infini lorsque la perturbation tend vers zéro, d'éviter la divergence de l'écart-type. Les coefficients de sensibilité à la multiplicité ne pouvant être directement calculés par TRIPOLI-4, une méthode basée sur le calcul des taux de fission a été employée pour leur calcul en considérant la relation :

$$k_{eff} = \frac{\nu \sum f_i \phi_i}{S}$$

La sensibilité du  $k_{eff}$  à la multiplicité  $S_{\nu_i}$ ,  $i$  indiquant le numéro du groupe énergétique considéré, peut alors s'exprimer :

$$S_{\nu_i} = \frac{\partial k_{eff}}{\partial \nu_i} \frac{\nu_i}{k_{eff}} = \frac{\tau_{f,i} \nu_i}{k_{eff} S}$$

Les taux de fission  $\tau_{f,i}$  et le terme  $k_{eff} S$  avec  $S$  la source sont calculés par TRIPOLI-4. On fait l'hypothèse qu'une perturbation de  $\nu$  ne modifie que très peu la source  $S$ . Les valeurs des multiplicités pour les isotopes du CBU sélectionnés associées à l'évaluation JEFF-3.1.1 sont disponibles dans JANIS-3.4. On peut ainsi obtenir les coefficients de sensibilité à la multiplicité pour les 15 groupes du maillage JEF-15 utilisé par RIB.

Les effets en réactivité présentés sont déterminés en pcm par la relation suivante entre le  $k_{eff}$  du cas étudié et le  $k_{eff(ref)}$  de référence correspondant à l'entreposage ou au transport des combustibles neufs :

$$\rho = 10^5 (k_{eff(ref)} - k_{eff}) \quad (6.1)$$

## 6.2 Cas d'un château de transport (OECD BUC Benchmark)

Le design du château de transport considéré est celui utilisé lors des phases II-B, II-C et II-D des benchmarks Crédit Burn-up de l'OCDE. Ce château est chargé de 21 assemblages REP 17 X 17 positionnés dans un panier en acier boré situé au centre. Dans le cadre des calculs de criticité, ces assemblages sont immergés dans l'eau. La référence [INDUST-3] décrit en détail la configuration de ce château dont la Figure 6.1 présente une coupe.

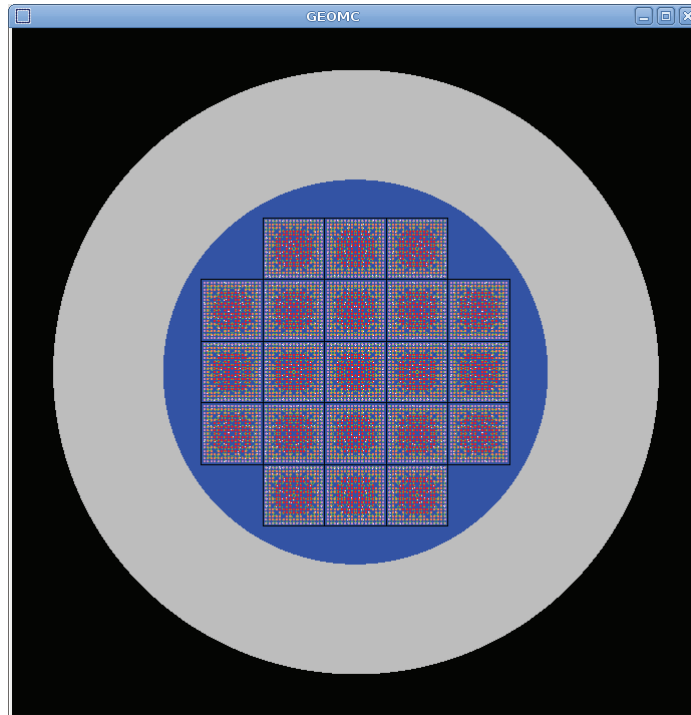


Figure 6.1 – Château de transport avec zonage des assemblages MOx - vue de dessus

L'impact du vecteur plutonium a été étudié pour cette configuration en prenant en compte un vecteur très pénalisant déterminé selon une méthode basée sur celle proposée par AREVA/SGN. Celle-ci repose sur la notion d'UOx équivalent vis-à-vis de la réactivité, [INDUST-4] et consiste en un ensemble de pré-calculs de sensibilité de diminution de la réactivité en fonction du taux de combustion et du temps de refroidissement pour un combustible MOx de référence. Cette méthodologie est mise en oeuvre au moyen de calculs de criticité impliquant d'une part des combustibles MOx, neufs et irradiés, et d'autre part des combustibles UOx, également neufs et irradiés afin d'établir des coefficients traduisant le poids des isotopes de l'uranium, du plutonium et de l'américium dans la perte de réactivité du combustible UOx équivalent pour une géométrie donnée (cas de type piscine). Ainsi, dans le cadre de cette étude, des relations simples entre la variation du  $k_{eff}$  et celle de la composition isotopique du plutonium ont été obtenues pour un combustible MOx de teneur 5% au taux de combustion de 35 GWj/t et pour un temps de refroidissement de 5 ans. Pour les assemblages combustibles aux caractéristiques comprises dans le domaine décrit dans la bibliothèque n° 201 de CESAR5.1 (basée sur l'évaluation JEF-2.2 et la bibliothèque multigroupe CEA93.V6) (Tableau 6.6), il a été montré l'existence d'un vecteur Pu enveloppe unique (Tableau 6.7) pour des assemblages refroidis moins de 10 ans quel que soit le taux de combustion [INDUST-5].

Paramètres du calcul d'évolution	Valeur minimale	Valeur maximale	Unité
TCT	0	60000	MWj/t
Teneur massique initiale (Pu+Am1)	4,5	6	%
Vieillessement	0	1461	Jours
Inter-cycles	0	5844	Jours
Puissance irradiation	1	65	W/g
Refroidissement	90	36525	Jours
Stockage	10 jours	106	Ans
Isotopie Pu	Val moy	Val min	Val max
<sup>238</sup> Pu	1,00 %	0,20 %	1,80 %
<sup>239</sup> Pu	64,00 %	56,96 %	71,04 %
<sup>240</sup> Pu	23,00 %	15,87 %	30,13 %
<sup>241</sup> Pu	7,65 %	3,44 %	11,86 %
<sup>242</sup> Pu	3,25 %	0,98 %	5,53 %
<sup>241</sup> Am	1,10 %	0,55 %	1,65 %

Tableau 6.6 – Domaine de validité de la BBL n° 201 de CESAR5.1

Pour les combustibles appartenant au domaine de validité de la BBL n° 201 de CESAR5.1 précédemment décrit, l'étude en référence [INDUST-5] a montré l'existence d'un vecteur plutonium enveloppe unique pour des assemblages refroidis moins de 10 ans quel que soit leur taux de combustion. Les caractéristiques de ce vecteur sont données dans le Tableau 6.7.

	Vecteur pénalisant
Isotopie Pu	
<sup>238</sup> Pu	0,20 %
<sup>239</sup> Pu	70,54 %
<sup>240</sup> Pu	15,87 %
<sup>241</sup> Pu	11,86 %
<sup>242</sup> Pu	0,98 %
<sup>241</sup> Am	0,55 %

Tableau 6.7 – Vecteurs plutonium enveloppe

Le Tableau 6.8 présente les marges CBU obtenues avant prise en compte des facteurs de pénalité et en considérant le vecteur plutonium « de référence » Saint-Laurent B1.

BU	TR	CBU [ $\rho(\text{combustible neuf}) - \rho(\text{BU}_i)$ ] (pcm)	
		CBU Schéma conservatif sans facteurs de pénalité	CBU Best-estimate
15 GWj/t	Fin irradiation	5790	14220
	5 ans	9980	15450
45 GWj/t	Fin irradiation	12490	29150
	5 ans	18540	32105
% en moyenne du CBU Best Estimate (total)		≈ 50 %	≈ 100 %

Tableau 6.8 – CBU Conservatif et Best Estimate d'un château de transport contenant des assemblages REP-MOx avec prise en compte d'un profil de taux de combustion

Le CBU obtenu avec la chaîne de calcul recommandée est de 18540 pcm pour un château de transport d'assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t et refroidis pendant 5 ans. **Cela représente près de 60 % du CBU total malgré la prise en compte des conservatismes.**

### 6.2.1 Transposition des biais et incertitudes de la réactivité du cas « château de transport »

Pour le cas conservatif, pour un burnup de 45 GWj/t et un temps de refroidissement de 5 ans, une étude de sensibilité est réalisée sur les actinides et les produits de fission afin de déterminer leurs poids respectifs en réactivité pour pouvoir définir les facteurs de pénalité associés [INDUST-6]. Les résultats de cette étude de sensibilité sont présentés respectivement pour les actinides et les produits de fission dans les Tableaux 6.9 et 6.12. Le facteur de multiplication effectif référence de ce cas ( $k_{\text{eff}}$  total) est de  $0,91626 \pm 27$  pcm ( $1 \sigma$ ).

Actinide	$k_{\text{eff}}$ (kstep) [i extrait]	$\sigma$ (pcm)	$\Delta\rho$ [ $\rho(\text{total})-\rho_i$ ](pcm)	Facteur de Pénalité	Pénalité sur le $k_{\text{eff}}$ (pcm)
$^{236}\text{U}$	0,91663	27	13	0,96	0,5
$^{234}\text{U}$ $^{235}\text{U}$ $^{238}\text{U}$ $^{238}\text{Pu}$ $^{239}\text{Pu}$ $^{240}\text{Pu}$ $^{241}\text{Pu}$ $^{242}\text{Pu}$	0,10305	26			788
$^{241}\text{Am}$	0,94936	26	3261	1,00	0
$^{242\text{m}}\text{Am}$	0,91507	26	169	0,80	34
$^{243}\text{Am}$	0,92330	26	654	0,91	59
$^{237}\text{Np}$	0,91770	26	94	0,93	7
<b>Cm</b>	0,91324	27	351	0,96	14
<b>Pénalité Totale (pcm)</b>				903	

**Tableau 6.9 – Pénalité à appliquer sur l'antiréactivité de chaque actinide (BU=45GWj/t, TR=5 ans) - cas château de transport**

La pénalité la plus forte est à appliquer aux principaux isotopes composant le combustible REP-MOx. Les représentativités des différentes expériences critiques sélectionnées dans l'ICSBEP et incertitudes calculées fournies par l'outil RIB sont données dans le Tableau 6.10 :

Expérience critique	Représentativité	Incertitude a priori (pcm)
MCT-3-4 <sub>s</sub>	0,87	863
MCT-3-6 <sub>s</sub>	0,90	862
MCT-4-4	0,93	457
MCT-5-1	0,90	640
MCT-7-1	0,90	507
MCT-8-2	0,90	478
MCT-11-1	0,87	1109

**Tableau 6.10 – Représentativité et incertitudes calculées par RIB pour les benchmarks ICSBEP sélectionnés**

Dans leur ensemble, ces expériences apparaissent très représentatives de la configuration étudiée, leur

coefficient de représentativité étant égal ou supérieur à 0,90. La prise en compte de ces expériences induit une réduction d'incertitude de 313 pcm pour un biais estimé à 235 pcm. Cette réduction d'incertitude est essentiellement due à la réduction de l'incertitude sur la capture du  $^{239}\text{Pu}$  dans les groupes les plus thermiques du maillage JEF-15 (13, 14, 15) présentée dans le Tableau 6.11, incertitude dont le poids était a priori surestimé.

Groupe énergétique	Incrtitude a priori (%)	Incrtitude a posteriori (%)
Groupe 13 ( $0,5 \text{ eV} < E < 4 \text{ eV}$ )	2,53	1,29
Groupe 14 ( $0,1 < E < 0,5 \text{ eV}$ )	3,82	1,41
Groupe 15 ( $E < 0,1 \text{ eV}$ )	3,97	1,81

**Tableau 6.11 – Réduction d'incertitude sur la capture du  $^{239}\text{Pu}$  dans les groupes 13,14 et 15 - application château de transport**

Concernant les produits de fission, les deux isotopes ayant le plus d'impact sur la réactivité sont le  $^{149}\text{Sm}$ , le  $^{103}\text{Rh}$  et les pénalités les plus importantes sont à attribuer au  $^{133}\text{Cs}$  et au  $^{143}\text{Nd}$  comme le montre le Tableau 6.12.

Produit de fission	$k_{\text{eff}}$ (kstep) [i extrait]	$\sigma$ (pcm)	$\Delta\rho$ [ $\rho(\text{total})-\rho_i$ ](pcm)	Facteur de Pénalité	Pénalité sur le $k_{\text{eff}}$ (pcm)
$^{95}\text{Mo}$	0,91737	27	61	0,96	2
$^{99}\text{Tc}$	0,91939	26	263	0,85	39
$^{101}\text{Ru}$	0,91778	26	102	0,71	29
$^{103}\text{Rh}$	0,92585	26	910		21
$^{109}\text{Ag}$	0,92008	26	332	0,89	36
$^{133}\text{Cs}$	0,92192	26	516	0,82	93
$^{143}\text{Nd}$	0,92403	27	728	0,90	73
$^{145}\text{Nd}$	0,91839	25	163	0,80	32
$^{147}\text{Sm}$	0,91778	26	102	0,78	22
$^{149}\text{Sm}$	0,93088	27	1412		51
$^{150}\text{Sm}$	0,91784	26	108	0,83	18
$^{151}\text{Sm}$	0,92482	27	806	0,93	56
$^{152}\text{Sm}$	0,92036	27	360	0,87	46
$^{153}\text{Eu}$	0,92002	27	326	0,99	4
$^{155}\text{Gd}$	0,92384	27	708		18
<b>Pénalité Totale (pcm)</b>				560	

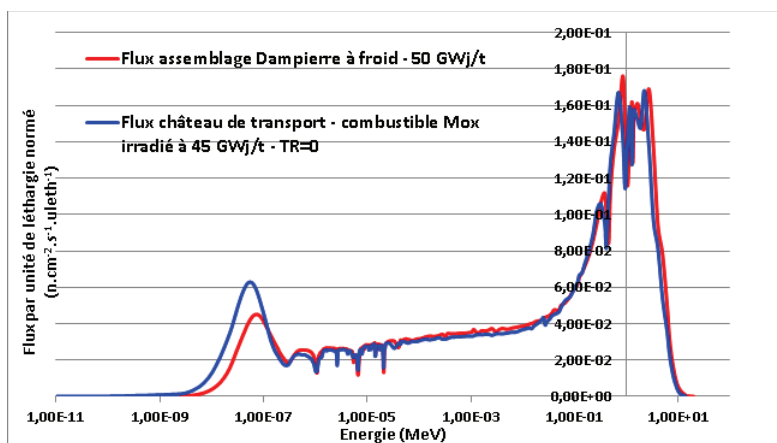
**Tableau 6.12 – Pénalité à appliquer sur l'antiréactivité de chaque produit de fission (BU=45GWj/t, TR=5 ans) - cas château de transport**

Les pénalités à appliquer à l'effet en réactivité du  $^{149}\text{Sm}$ , du  $^{103}\text{Rh}$  et du  $^{155}\text{Gd}$  ayant été déterminées par la Méthodologie des Expériences Intégrales, l'outil RIB a fourni les coefficients de représentativité de leur empoisonnement mesuré dans MINERVE par rapport à celui déterminé dans l'application château de transport considérée (Tableau 6.13).

Echantillon oscillé	Représentativité de l'empoisonnement de l'isotope dopant
SmNAT dans R1MOX	0,99943
Sm9 dans R1MOX	0,99939
RH dans R1UO2 (MAESTRO)	0,64494
Gd5 dans R1MOX	0,99609

**Tableau 6.13 – Représentativité de l'empoisonnement du  $^{149}\text{Sm}$ , du  $^{103}\text{Rh}$  et du  $^{155}\text{Gd}$  mesuré dans MINERVE calculé par RIB - cas château de transport**

On y constate l'excellente représentativité de celui-ci pour les isotopes  $^{149}\text{Sm}$  et  $^{155}\text{Gd}$  avec des coefficients de représentativité de l'ordre de 0,99. Concernant l'empoisonnement du  $^{103}\text{Rh}$ , celui-ci apparaît moins représentatif du fait qu'il ait été évalué sur la base du profil de sensibilité correspondant à l'oscillation de l'échantillon RH durant le programme MAESTRO beaucoup plus thermique que celui correspondant à l'application. En support à cette étude, la Figure 6.2 compare les flux observés dans le château de transport étudié et pour un assemblage REP-MOx AFA à froid.



**Figure 6.2 – Flux dans le château de transport contenant 21 assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t - TR= 5 ans**

On y constate que le spectre observé dans le château de transport est plus thermique. La Figure 6.3 présente également les coefficients de sensibilité à un groupe du  $k_{eff}$  à la multiplicité, à la capture, à la diffusion et à la fission des principaux isotopes du CBU REP-MOx obtenus dans le cas château de transport.

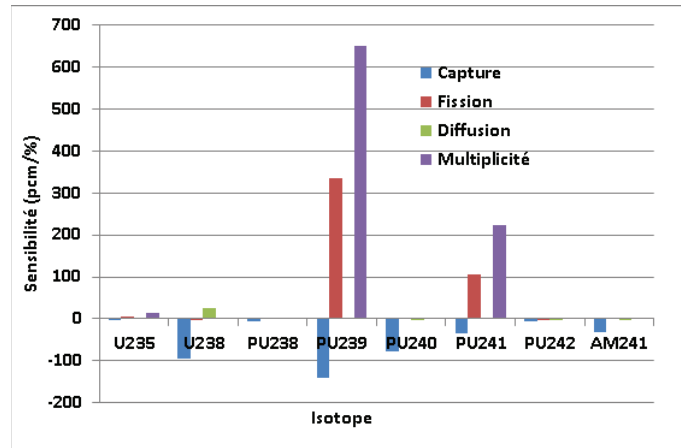


Figure 6.3 – Profil de sensibilité- château de transport contenant 21 assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t - TR= 5 ans

On y remarque que  $k_{eff}$  de l'application château de transport est particulièrement sensible aux données nucléaires des actinides et en particulier du  $^{239}\text{Pu}$ , du  $^{240}\text{Pu}$ , du  $^{241}\text{Pu}$  et de l' $^{238}\text{U}$ .

## 6.2.2 Evaluation du CBU

Par ailleurs, les effets en réactivité de certains conservatismes introduits dans la chaîne de calcul ont été évalués pour un taux de combustion de 45 GWj/t et pour un temps de refroidissement de 5 ans. Les résultats obtenus figurent dans le Tableau 6.14.

		Effet sur le $k_{eff}$ (pcm)
Par comparaison avec le même cas non barré	Présence d'une barre en AIC insérée sur toute sa hauteur	4250
	Application des <b>facteurs correctifs sur le bilan matière</b>	1970
	Application des <b>facteurs de pénalité</b> sur l'effet en <b>réactivité des PF</b>	560
	Application des <b>facteurs de pénalité</b> sur l'effet en <b>réactivité des actinides</b>	903
	Prise en compte d'un vecteur plutonium pénalisant	4240

Tableau 6.14 – Effet en réactivité de certains conservatismes de la chaîne de calcul - cas château de transport (BU=45 GWj/t, TR=5 ans)

L'impact de la prise en compte du profil moyen de taux de combustion déterminé pour les combustibles UOx dans le calcul Best Estimate a été évalué à 1950 pcm pour un taux de combustion de 45 GWj/t et pour un temps de refroidissement de 5 ans.

Le conservatisme associé à la prise en compte d'un vecteur plutonium enveloppe tel que décrit dans le Tableau 6.7 s'avère être très importante (4240 pcm). Il pourrait être alors envisagé d'utiliser un vecteur plutonium conservatif ayant une composition proche de la composition des assemblages considérés (appartenant

par exemple à un même lot de fabrication dont les compositions initiales sont connues avec une variation en Pu fissile limitée à 2%) afin de réduire ce conservatisme tout en prenant en compte ce paramètre de la méthodologie REP-MOx. Un seul vecteur serait alors à considérer pour l'ensemble des historiques d'irradiation considérés et quelle que soit la date de déchargement des combustibles. Le Tableau 6.15 fournit les valeurs du CBU conservatif prenant en compte les facteurs de pénalité pour un taux de combustion de 45 GWj/t et un temps de refroidissement de 5 ans.

BU	TR	CBU [ $\rho(\text{combustible neuf}) - \rho(\text{BU}_i)$ ] (pcm)	
		CBU Schéma conservatif avec facteurs de pénalité	CBU Best-estimate
45 GWj/t	5 ans	20000	32105
% en moyenne du CBU Best Estimate (total)		60 %	≈ 100 %

Tableau 6.15 – CBU Conservatif et Best Estimate d'un château de transport contenant des assemblages REP-MOx avec prise en compte d'un profil de taux de combustion



### 6.3 Cas d'un entreposage en piscine

Le motif de la piscine d'entreposage modélisé accueille neuf assemblages centrés dans leurs alvéoles en inox dans une eau non borée à température ambiante (Figure 6.4).

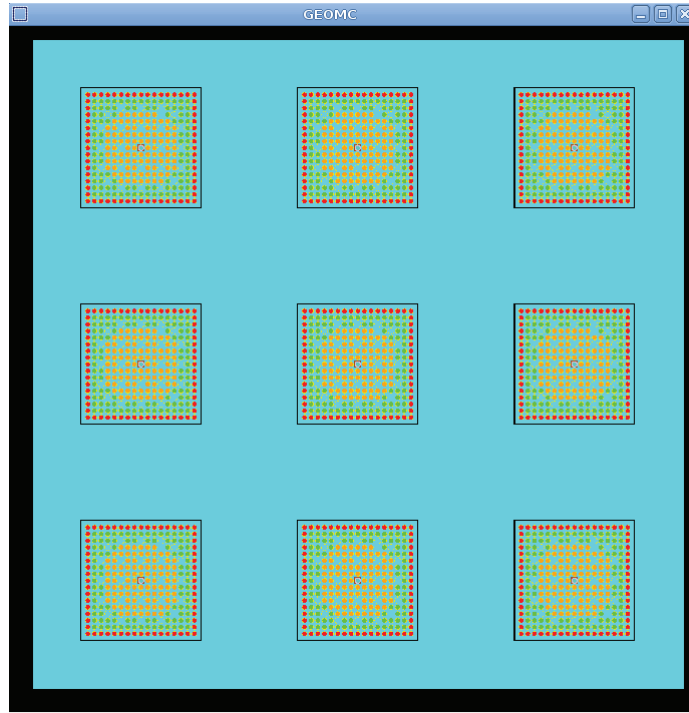


Figure 6.4 – Motif piscine d'entreposage avec zonage des assemblages MOx– vue de dessus

Le Tableau 6.16 présente le CBU obtenu avant prise en compte des facteurs de pénalité pour des taux de combustion de 15 et 45 GWj/t et des temps de refroidissement de 0 et 5 ans. Aucun profil de taux de combustion ni vecteur plutonium enveloppe n'est ici considéré. Notons que tout comme pour le cas du château de transport, l'hypothèse peu réaliste d'un entreposage uniforme d'assemblages identiques est également pénalisante.

BU	TR	CBU [ $\rho(\text{combustible neuf}) - \rho(\text{BU}_i)$ ] (pcm)	
		CBU Schéma conservatif sans facteurs de pénalité	CBU Best-estimate
15 GWj/t	Fin irradiation	3770	9770
	5 ans	6850	10410
45 GWj/t	Fin irradiation	8490	20250
	5 ans	12930	22550
% moyen du CBU Best Estimate (total)		$\approx 50 \%$	$\approx 100 \%$

Tableau 6.16 – CBU Conservatif et Best Estimate d'un entreposage en piscine d'assemblages REP-MOx

Le CBU obtenu s'élève à 12930 pcm pour une piscine d'entreposage contenant des assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t et refroidis 5 ans soit 60 % du CBU « réel ». Les gains obtenus sont du même ordre de grandeur que ceux présentés pour le cas du château de transport. Le CBU évalué apparaît ainsi indépendant de l'application considérée, ce qui démontre la robustesse de la chaîne de calcul utilisée.

### 6.3.1 Transposition des biais et incertitudes de la réactivité du cas « piscine d'entreposage »

Pour le cas conservatif, pour un burnup de 45 GWj/t et un temps de refroidissement de 5 ans, une étude de sensibilité est réalisée sur les actinides et les produits de fission afin de déterminer leurs poids respectifs en réactivité pour pouvoir définir les facteurs de pénalité associés. Les résultats de cette étude de sensibilité sont présentés dans les Tableaux 6.17 et 6.19. Le facteur de multiplication effectif référence de ce cas ( $k_{\text{eff}}$  total) est de  $0,68088 \pm 15 \text{ pcm}$  ( $1 \sigma$ ). Les valeurs de pénalités surlignées sont issues des calculs de biais et incertitudes « a posteriori » réalisés par RIB.

Actinide	$k_{\text{eff}}$ (kstep) [i extrait]	$\sigma$ (pcm)	$\Delta\rho$ [ $\rho(\text{total})-\rho_i$ ](pcm)	Pénalité	Pénalité sur le $k_{\text{eff}}$ (pcm)
<sup>236</sup> U	0,68099	15	11	0,96	0,4
<sup>234</sup> U					
<sup>235</sup> U					
<sup>238</sup> U					
<sup>238</sup> Pu		15			563
<sup>239</sup> Pu					
<sup>240</sup> Pu					
<sup>241</sup> Pu					
<sup>242</sup> Pu					
<sup>241</sup> Am	0,70464	15	2377	1,00	0
<sup>242m</sup> Am	0,67973	15	115	0,80	23
<sup>243</sup> Am	0,68545	15	457	0,91	41
<sup>237</sup> Np	0,68190	15	102	0,93	7
Cm	0,67807	15	281	0,96	11
<b>Pénalité Totale (pcm)</b>					645

Tableau 6.17 – Pénalité à appliquer sur l'antiréactivité de chaque actinide (BU=45GWj/t, TR=5 ans) - cas piscine

Les représentativités des différentes expériences critiques sélectionnées dans l'ICSBEF et incertitudes calculées fournies par l'outil RIB sont données dans le Tableau 6.18 :

Expérience critique	Représentativité	Incertitude calculée (pcm)
MCT-3-4 <sub>s</sub>	0,80	863
MCT-3-6 <sub>s</sub>	0,81	862
MCT-4-4	0,85	457
MCT-5-1	0,83	640
MCT-7-1	0,84	507
MCT-8-2	0,86	478
MCT-11-1	0,78	1109

Tableau 6.18 – Représentativité et incertitudes calculées par RIB pour les benchmarks ICSBEF sélectionnés - cas piscine d'entreposage

On remarque que les coefficients de représentativité des expériences critiques « réseaux MOx » de l'ICSBEF obtenus avec cette configuration sont tous plus faibles que ceux calculés avec la configuration château de transport présentés dans le Tableau 6.10. Ceci peut s'expliquer du fait d'un rapport de modération différent entre l'application étudiée et les configurations expérimentales choisies.

La prise en compte de ces expériences induit une réduction d'incertitude de 64 pcm pour une incertitude a posteriori de 328 pcm et un biais estimé à 235 pcm. Cette réduction d'incertitude est également essentiellement due à la réduction de l'incertitude sur la capture du  $^{239}\text{Pu}$  dans les groupes les plus thermiques du maillage JEF-15 (13, 14, 15). Concernant les produits de fission, les deux isotopes ayant l'impact le plus important sur la réactivité sont le  $^{149}\text{Sm}$  et le  $^{151}\text{Sm}$  et les pénalités les plus importantes sont également à appliquer à l'effet en réactivité du  $^{133}\text{Cs}$  et du  $^{143}\text{Nd}$ .

Produit de fission	$k_{\text{eff}}$ (kstep) [i extrait]	$\sigma$ (pcm)	$\Delta\rho$ [ $\rho(\text{total})-\rho_i$ ](pcm)	Pénalité	Pénalité sur le $k_{\text{eff}}$ (pcm)
$^{95}\text{Mo}$	0,68196	15	108	0,96	4
$^{99}\text{Tc}$	0,68287	15	200	0,85	30
$^{101}\text{Ru}$	0,68219	15	132	0,71	38
$^{103}\text{Rh}$	0,68731	15	643		13
$^{109}\text{Ag}$	0,68320	15	232	0,89	25
$^{133}\text{Cs}$	0,68448	15	360	0,82	65
$^{143}\text{Nd}$	0,68728	15	640	0,90	64
$^{145}\text{Nd}$	0,68269	15	182	0,80	36
$^{147}\text{Sm}$	0,68227	15	139	0,78	30
$^{149}\text{Sm}$	0,69272	15	1184		38
$^{150}\text{Sm}$	0,68182	15	94	0,83	16
$^{151}\text{Sm}$	0,68769	15	681	0,93	48
$^{152}\text{Sm}$	0,68347	15	259	0,87	33
$^{153}\text{Eu}$	0,68313	15	226	0,99	3
$^{155}\text{Gd}$	0,68728	15	641		13
Pénalité Totale (pcm)				455	

Tableau 6.19 – Pénalité à appliquer sur l'antiréactivité de chaque produit de fission (BU=45GWj/t, TR=5 ans) - cas piscine

Le Tableau 6.20 présente les coefficients de représentativité calculés par RIB pour les trois isotopes dont les pénalités ont été déterminées par la Méthodologie des Expériences Intégrales.

Echantillon oscillé	Représentativité de l'empoisonnement de l'isotope dopant
SmNAT dans R1MOX	0,99893
Sm9 dans R1MOX	0,99887
RH dans R1UO2 (MAESTRO)	0,73021
Gd5 dans R1MOX	0,99290

Tableau 6.20 – Représentativité de l'empoisonnement du  $^{149}\text{Sm}$ , du  $^{103}\text{Rh}$  et du  $^{155}\text{Gd}$  mesuré dans MINERVE calculé par RIB - cas piscine d'entreposage

On remarque que ces coefficients de représentativité sont indépendants de l'application pour les poisons purement thermiques tels que le  $^{149}\text{Sm}$  et le  $^{155}\text{Gd}$ . La Figure 6.5 compare les flux observés dans la piscine d'entreposage étudiée avec celui d'un assemblage REP-MOx AFA à froid.

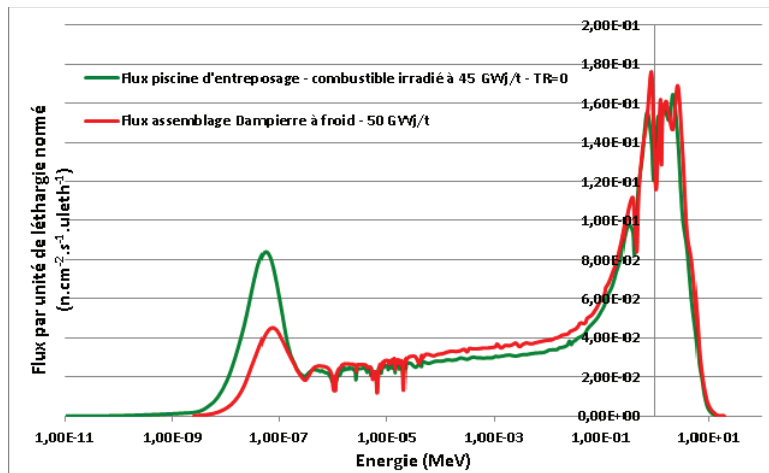


Figure 6.5 – Flux dans l’alvéole de la piscine d’entreposage contenant 9 REP-MOx irradiés à 45 GWj/t - TR= 5 ans

De même que pour l’application château de transport, le flux observé dans la piscine d’entreposage est plus thermique que celui de l’assemblage REP-MOx. La Figure 6.6 présente les coefficients de sensibilité à un groupe du  $k_{eff}$  à la multiplicité, à la capture, à la diffusion et à la fission des principaux actinides du CBU REP-MOx obtenus dans le cas piscine d’entreposage.

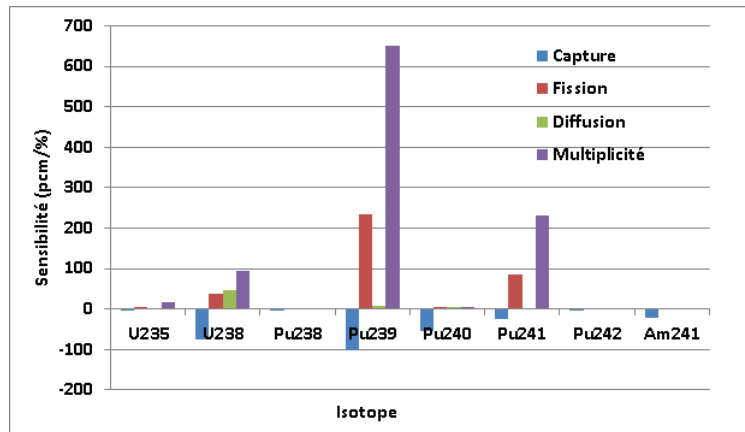


Figure 6.6 – Profil de sensibilité- alvéole de la piscine d’entreposage contenant 9 REP-MOx irradiés à 45 GWj/t - TR= 5 ans

On y constate la même sensibilité majoritaire du  $k_{eff}$  aux données nucléaires du  $^{239}\text{Pu}$ , du  $^{240}\text{Pu}$ , du  $^{241}\text{Pu}$  et de l’ $^{238}\text{U}$ .

### 6.3.2 Evaluation du CBU

Les effets en réactivité de certains conservatismes introduits dans la chaîne de calcul ont été évalués pour un taux de combustion de 45 GWj/t et pour un temps de refroidissement de 5 ans. Les résultats obtenus figurent dans le Tableau 6.21

	Effet sur le $k_{\text{eff}}$ (pcm)
Application des facteurs correctifs sur le bilan matière	1430
Application des facteurs de pénalité sur l'effet en réactivité des PF	455
Application des facteurs de pénalité sur l'effet en réactivité des actinides	645

**Tableau 6.21 – Effet en réactivité des facteurs correctifs isotopiques et des facteurs de pénalité - cas piscine (BU=45 GWj/t, TR=5 ans)**

En prenant en compte ces pénalités dans le cas conservatif, pour un entreposage en piscine d'assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t et refroidis 5 ans, le Crédit Burn-up évalué est présenté dans le Tableau 6.22 et représente 60 % du CBU total.

BU	TR	CBU [ $\rho(\text{combustible neuf}) - \rho(\text{BU}_i)$ ] (pcm)	
		CBU Schéma conservatif avec facteurs de pénalité	CBU Best-estimate
45 GWj/t	5 ans	14030	22550
% moyen du CBU Best Estimate (total)		60 %	$\approx 100$ %

**Tableau 6.22 – CBU Conservatif et Best Estimate d'un entreposage en piscine d'assemblages REP-MOx**

## 6.4 Conclusion

La synthèse des recommandations et des conservatismes introduits dans la chaîne de calcul du Crédit Burn-up associés à la méthodologie spécifique REP-MOx développée a été présentée dans ce chapitre. Les gains associés à la prise en compte de cette nouvelle méthodologie basée sur l'évaluation de données nucléaires JEFF-3.1.1 y ont été évalués avec le code probabiliste TRIPOLI-4 pour deux applications industrielles : une piscine d'entreposage et un château de transport. Les pénalités à appliquer sur l'effet en réactivité des différents isotopes du CBU considérés y ont été déterminées pour des assemblages irradiés à 45 GWj/t et refroidis 5 ans dans ces deux configurations. Les résultats obtenus sont résumés pour ce taux de combustion et ce temps de refroidissement dans le Tableau 6.23. Aucun profil de taux de combustion n'a été considéré pour le cas entreposage en piscine (ce qui peut contribuer à expliquer les faibles valeurs de  $k_{\text{eff}}$  obtenues) et l'impact de la prise en compte d'un vecteur plutonium enveloppe très conservatif ( $\approx 4000$  pcm), évalué dans le cas du château de transport n'apparaît pas dans ces résultats.

Configuration	BU, TR	CBU [ $\rho(\text{combustible neuf}) - \rho(\text{BU}_i)$ ] (pcm)	
		CBU Schéma conservatif	CBU Best Estimate
<b>Piscine d'entreposage</b>	BU = 45 GWj/t TR=5 ans	14030	22550
<b>Château de transport</b>	BU = 45 GWj/t TR=5 ans	20000	32105
% du CBU Best Estimate		60 %	100 %

**Tableau 6.23 – CBU conservatif et Best Estimate d'une piscine d'entreposage et d'un château de transport d'assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t et refroidis 5 ans**

Les conservatismes introduits par la méthodologie, bénéficiant de la qualité des programmes expérimentaux dédiés du CEA et mieux justifiés physiquement, représentent 40 % du Crédit Burn-up total. La compa-

raison des résultats obtenus pour les deux configurations a montré que le CBU évalué était indépendant de l'application considérée et de ce fait a prouvé la robustesse de la chaîne de calcul mise en oeuvre.

## **Application de la méthodologie développée aux cas industriels : bibliographie**

[INDUST-1] C. RIFFARD, A. SANTAMARINA, J.F THRO, F. LAVAUD, *Recommended bounding axial profiles in BUC applications from actual burnup measurement of French PWR assemblies*, Proc. of IAEA/CSN 2009, Cordoba, Spain, October 2009

[INDUST-2] C. RIFFARD, A. SANTAMARINA, Communication CEA, 2009

[INDUST-3] J.C NEUBER, *Specification for II-E Benchmark – Study on the impact for changes the isotopic inventory due to control rod insertions in PWR UO<sub>2</sub> fuel assemblies during irradiation on the end effect*, [[www.ocde-neo.org/science/wpncs/buc/specification/phase-II-E/specification\\_ph2e-rev.pdf](http://www.ocde-neo.org/science/wpncs/buc/specification/phase-II-E/specification_ph2e-rev.pdf)]

[INDUST-4] F. GEVAERT, G. CAPLIN, A. MARC, E. GUILLOU, *Methodology to determine a bounding isotopic MOx composition for a given MOx irradiated fuel population*, Proceedings of Int Conf ICNC, St Petersburg, Russia, May 28 – June 1, 2007

[INDUST-5] C. RIFFARD, M. KHALFOUN, Communication CEA, 2010

[INDUST-6] L. SAN FELICE, A. SANTAMARINA, C. RIFFARD, F. RIOU, M. LEIN, M. TARDY, *BUC implementation for a transport cask application using penalty terms from French experiments*, Proceedings of Int Conf GLOBAL2009, Paris, France, September 6-11, 2009

# CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Dans le cadre des études de sûreté-criticité relatives à l'entreposage en piscine, au transport et au retraitement des combustibles irradiés, une approche très conservatrice est généralement considérée. Elle consiste à prendre en compte les combustibles à l'état neuf, c'est-à-dire les plus réactifs possibles. Le « Crédit Burn-up » est la prise en compte dans ces études du caractère irradié des assemblages et notamment de la consommation de la matière fissile et de la formation d'actinides et de produits de fission absorbants. Sa considération conduit à gagner des marges importantes en terme de dimensionnement des installations et donc à un gain économique substantiel pour l'industriel tout en conservant le même niveau de sûreté. Une méthodologie CBU rigoureuse, développée par le CEA en collaboration avec AREVA-NC a récemment été validée et ré-évaluée pour les combustibles REP-UOx. Cependant, 22 réacteurs sur les 58 que compte la France utilisent également du combustible MOx. De plus en plus d'assemblages MOx irradiés doivent donc être entreposés et transportés, ce qui conduit les industriels à s'intéresser à la prise en compte du CBU pour ces applications. C'est dans ce contexte que se sont déroulés ces travaux de recherche.

**Sur la base d'une revue bibliographique exhaustive mettant en lumière les particularités des combustibles REP-MOx, une démarche rigoureuse a été suivie afin de proposer une méthodologie CBU adaptée aux combustibles REP-MOx validée et physiquement représentative, permettant de prendre en compte les produits de fission et permettant d'évaluer les biais liés au bilan-matière et à l'antiréactivité des isotopes considérés.**

Cette démarche s'est articulée autour des études suivantes :

- détermination de facteurs correctifs isotopiques permettant de garantir le conservatisme du calcul de criticité sur la base de la qualification du formulaire d'évolution DARWIN-2.3 pour les applications REP-MOx et d'une analyse des données nucléaires des produits de fission métalliques afin de déterminer l'impact des incertitudes associées sur le calcul de leur bilan matière ;
- évaluation de l'antiréactivité des produits de fission grâce à l'interprétation avec le formulaire dédié PIMS développé au SPRC/LEPh des expériences d'oscillation du programme CBU et MAESTRO<sup>2</sup> réalisées dans MINERVE avec mise à jour des schémas de calcul pour la criticité ;
- élaboration de matrices de covariances réalistes associées à la capture de deux des principaux produits de fission du CBU REP-MOx :  $^{149}\text{Sm}$  et le  $^{103}\text{Rh}$  pour JEFF-3.1.1 ;
- détermination des biais et incertitudes « a posteriori » dus aux données nucléaires des actinides et produits de fission considérés pour deux applications industrielles (piscine d'entreposage et château de transport) par une étude de transposition réalisée avec l'outil RIB développé au SPRC/LECy qui a bénéficié à cette occasion de développements spécifiques et de mises à jour des données utilisées (importation des données de covariance issues de la bibliothèque COMAC V0 associée à JEFF-3.1.1

---

2. Résultats d'interprétation du programme MAESTRO fournis par le SPRC/LEPh



pour les isotopes  $^{235,238}\text{U}$ ,  $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  et  $^{155}\text{Gd}$  et prise en compte des corrélations inter-réactions pour un même isotope) ;

- évaluation de la méthodologie proposée pour deux applications industrielles (piscine d'entreposage et château de transport) et évaluation des conservatismes identifiés, intérêt et robustesse.

L'ensemble de ces études s'appuie sur les outils de calcul de référence du CEA : le code déterministe APOLLO-2.8, le code probabiliste TRIPOLI-4 utilisé par le formulaire de criticité CRISTAL V2, le formulaire d'évolution DARWIN-2.3, sur l'évaluation de données nucléaires JEFF-3.1.1 ainsi que sur la Méthode des Expériences Intégrales basée sur les principes de la ré-estimation des données nucléaires et de la représentativité expérimentale.

### BIAIS ASSOCIES A L'INVENTAIRE DES ISOTOPES DU CBU REP-MOX

Les résultats obtenus avec le schéma de calcul  $P_{ij}$ -SHEM et les données nucléaires issues de JEFF-3.1.1 montrent une réduction des biais pénalisés (en valeur absolue) associés au bilan-matière des isotopes suivants par rapport aux valeurs obtenues avec JEF-2.2 :  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{245}\text{Cm}$ ,  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{145}\text{Nd}$ ,  $^{147}\text{Sm}$ ,  $^{149}\text{Sm}$ ,  $^{150}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{95}\text{Mo}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{101}\text{Ru}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ , ce qui traduit la grande fiabilité du produit DARWIN-2.3/SHEM/CEA2005V4 pour la prédiction du bilan-matière des isotopes du CBU REP-MOX. Lors de la détermination des facteurs isotopiques associés, le poids des incertitudes associées aux écarts calcul-expérience fournis par le dossier de qualification de DARWIN-2.3 a été pris en compte par la méthode des moindres carrés pondérés.

L'analyse des voies de formation et de disparition des produits de fission métalliques (essentiellement issus de la décroissance  $\beta$ - d'isotopes à vie courte, très faiblement produits par fission directe et disparaissant principalement par capture radiative) a mis en évidence que les principales sources d'incertitudes identifiées pour le calcul de leur bilan-matière sont les valeurs de rendements de fission cumulés dans le domaine thermique du plutonium 239 et du plutonium 241. Les incertitudes éventuelles sur les données de décroissance des isotopes amont et sur les valeurs de sections efficaces de capture n'ont qu'un faible impact. L'incertitude relative au calcul du bilan-matière des produits de fission métalliques dans les combustibles REP-MOX a été estimée à :

- 10% pour le rhodium 103 ;
- 10% pour le technétium 99 ;
- 5% pour le ruthénium 101 ;
- 13% pour l'argent 109 ;
- 4% pour le molybdène 95.

Un important travail de comparaison des données nucléaires impliquées entre les évaluations américaine ENDF/B-VII.V0, japonaise JENDL4 et JEFF-3.1.1, utilisée par le formulaire DARWIN2.3, a été réalisé, permettant de mettre en évidence la précision accrue des rendements de fission de JEFF-3.1.1 (faibles incertitudes).

### BIAIS ASSOCIES A L'EFFET EN REACTIVITE DES ISOTOPES CONSIDERES

L'évaluation du poids en réactivité des actinides retenus a fait l'objet de part le monde de nombreux programmes expérimentaux et en particulier de nombreux benchmarks de l'ICSBEF parmi lesquels sept configurations MIX-COMP-THERM (réseaux UO<sub>2</sub>-PUO<sub>2</sub>) aux compositions isotopiques les plus proches de celles d'un assemblage MOx AFA typique ont été retenues afin d'obtenir, par la Méthode des Expériences Intégrales basée sur la re-estimation des données nucléaires et la théorie de la représentativité et de la transposition, le biais et l'incertitude associée sur le  $k_{\text{eff}}$  d'une application

**REP-MOx** choisie liée aux principaux isotopes présents dans le combustible :  $^{235,238}\text{U}$ ,  $^{238,239,240,241,242}\text{Pu}$  et d'en déduire une pénalité à lui appliquer. **Les pénalités à appliquer à l'effet en réactivité des autres actinides considérés dans la méthodologie CBU REP-MOx ont été évaluées soit sur la base des résultats de qualification de leurs sections efficaces de capture issus de l'interprétation du programme d'oscillation OSMOSE réalisé dans le réacteur MINERVE du CEA Cadarache, soit sur la base de valeurs d'incertitudes liées à ces mêmes sections fournies par la littérature.**

**La prise en compte des résultats d'interprétation des programmes d'oscillation CBU et MAESTRO, comptant parmi les rares programmes expérimentaux mettant œuvre des produits de fission, a été réalisée avec le formulaire dédié PIMS développé au SPRC/LEPh et basé sur les recommandations du schéma de calcul SHEM-MOC et la Théorie des Perturbations. Ceci constitue une mise à jour des schémas de calcul pour la criticité et en particulier les applications Crédit Burn-up.** De part les outils et méthodes implémentés dans ce formulaire, les biais de calcul sont désormais quantifiés et réduits de manière à permettre l'obtention d'informations directes sur les données nucléaires. Les résultats de ces interprétations conduisent aux tendances suivantes, récapitulées par la Figure 6.7 :

- la section de capture de l' $^{153}\text{Eu}$  est sous-estimée de 5%,
- la section de capture des  $^{149}\text{Sm}$  et  $^{152}\text{Sm}$ , du  $^{155}\text{Gd}$ , du  $^{143}\text{Nd}$  et de l' $^{109}\text{Ag}$  est bien évaluée ( $C-E/E < 5\%$ ),
- la section de capture du  $^{145}\text{Nd}$  (+18%) est fortement surestimée, ce qui n'a pas été observé dans le réseau R1UO2,
- les sections de capture du  $^{99}\text{Tc}$  et du  $^{133}\text{Cs}$  sont surestimées de 10%,
- la forte surestimation de la section de capture du  $^{103}\text{Rh}$  (+12%) observée lors du programme CBU est à modérer par le fait que la technique de mise en solution induit d'importantes incertitudes analytiques.

De manière générale, une surestimation de la capture de l'ensemble des produits de fission du CBU a été observée dans R1MOX comme l'illustre la Figure 6.7. Aucune tendance n'a pu être obtenue sur l'empoisonnement individuel des isotopes  $^{150}\text{Sm}$ ,  $^{151}\text{Sm}$  et  $^{101}\text{Ru}$  (représentant 18.6% de l'empoisonnement des 15 PF sélectionnés à 20 GWj/t). En effet, l'essentiel de la capture d'un échantillon dopé  $^{150}\text{Sm}$  risquant d'être due au  $^{149}\text{Sm}$  résiduel (comme dans le cas de l'échantillon Sm7) aucun échantillon n'a été fabriqué pour ce produits de fission ni pour le  $^{151}\text{Sm}$ , dont la demi-vie est trop courte pour permettre la fabrication d'un échantillon. Concernant le  $^{101}\text{Ru}$  présent dans l'échantillon Runat, il est aussi absorbant que le  $^{99}\text{Ru}$ , ce qui empêche l'interprétation du résultat obtenu. Le programme MAESTRO, au cours duquel un nouvel échantillon métallique de rhodium pur a été oscillé afin de s'affranchir des effets de granulométrie des échantillons sur matrice combustible, a confirmé quant à lui la qualité de l'évaluation JEFF-3.1.1 pour la capture du  $^{103}\text{Rh}$  avec un écart calcul-expérience de  $0,4\% \pm 1,9\%$  obtenu par le SPRC/LEPh, et est en accord avec les dernières mesures microscopiques effectuées à l'IRMM.

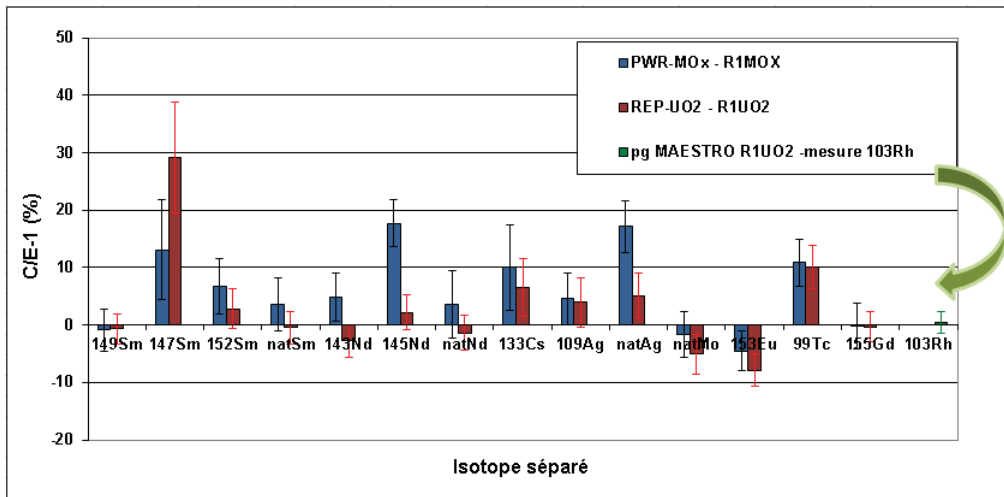


Figure 6.7 – Ecarts C/E-1 (en %) des isotopes dopants étudiés dans le cadre du programme CBU dans R1UO2 et R1MOX – calculs JEFF-3.1.1

L'impact des différentes options du schéma d'interprétation retenues afin de répondre à la problématique Crédit Burn-up a été évalué (bibliothèques de données nucléaires, solveur, domaine d'autoprotection des isotopes séparés, discrétisation de l'échantillon oscillé, méthode de calcul de la réactivité, impact de la prise en compte des impuretés, calcul du coefficient de calibration, impact des fuites et des corrections des effets 3D). Ces résultats d'interprétation ont été directement utilisés dans le but d'appliquer une pénalité sur l'effet en réactivité de chacun des produits de fission considérés. Cependant, pour les trois principaux d'entre eux : le  $^{149}\text{Sm}$ , le  $^{103}\text{Rh}$  et le  $^{155}\text{Gd}$ , la mise en œuvre de la Méthode des Expériences Intégrales a été privilégiée. **Aucune donnée de covariance n'étant disponible dans COMAC V0 pour les isotopes  $^{149}\text{Sm}$  et  $^{103}\text{Rh}$  un important travail a été réalisé afin de produire des matrices de covariance réalistes associées à leur capture sur la base de données de covariance a priori issues de l'évaluation américaine ENDF/B-VII.V1, largement utilisée dans le monde, et des résultats d'interprétation des programmes d'oscillation CBU et MAESTRO à l'aide du code de ré-estimation des données nucléaires RDN. Le retour sur les données nucléaires dérivé de ces programmes a permis de réduire les incertitudes a priori liées aux sections de capture de ces deux isotopes d'un facteur deux, ce qui montre que cette réduction est indépendante des données a priori retenues.**

## APPLICATION DE LA METHODOLOGIE A DEUX CONFIGURATIONS « INDUSTRIELLES »

L'application de la méthodologie à deux applications représentatives de l'entreposage et du transport, a montré, comme le présente le Tableau 6.24, que les conservatismes qu'elle introduit, bénéficiant de la qualité des programmes expérimentaux dédiés du CEA et mieux justifiée physiquement, représentent 40 % du Crédit Burn-up total.

Configuration	BU, TR	CBU [ $\rho(\text{combustible neuf}) - \rho(\text{BU}_i)$ ] (pcm)	
		CBU Schéma conservatif	CBU Best Estimate
Piscine d'entreposage	BU = 45 GWj/t TR=5 ans	14030	22550
Château de transport	BU = 45 GWj/t TR=5 ans	20000	32105
% du CBU Best Estimate		60 %	100 %

Tableau 6.24 – CBU conservatif et Best Estimate d'une piscine d'entreposage et d'un château de transport d'assemblages REP-MOx irradiés à 45 GWj/t et refroidis 5 ans

De plus, la comparaison des résultats obtenus pour les deux configurations a montré que le CBU évalué est indépendant de l'application considérée, prouvant la robustesse de la chaîne de calcul mise en oeuvre. L'impact de la prise en compte des facteurs correctifs isotopiques a été évalué à environ 1500 pcm et celui des facteurs de pénalité appliqués aux actinides et produits de fission à environ 1300 pcm.

## PERSPECTIVES

Concernant les programmes expérimentaux, il peut être suggéré d'étendre la base des PIE Data associée aux combustibles REP-MOx à faible taux de combustion en particulier pour les produits de fission du CBU et de réaliser de nouvelles mesures pour les cinq produits de fission métalliques pour lesquels un seul jeu d'écarts calcul-expérience est actuellement disponible. Suite à la réalisation des programmes d'oscillation dans MINERVE et au vu des résultats obtenus, de nouvelles perspectives peuvent être envisagées en vue de leur amélioration comme la réalisation de nouvelles oscillations d'un échantillon de  $^{147}\text{Sm}$  muni d'un filtre Cadmium pour annuler la contribution du  $^{149}\text{Sm}$  à son antiréactivité, de nouveaux échantillons dopés  $^{133}\text{Cs}$  ainsi que de nouveaux échantillons dopés respectivement  $^{99}\text{Ru}$  et  $^{101}\text{Ru}$  [APPLI-29]. De plus, l'utilisation de nouveaux échantillons de calibration contenant de l'or pourrait également permettre de vérifier la justesse du calcul du flux dans le domaine épithermique, étant donné qu'il a été mis en évidence une augmentation des écarts calcul-expérience avec le durcissement du spectre pour certains échantillons.

De par l'existence de bibliothèques de données de covariance de plus en plus complètes et les importants travaux dont elles font l'objet s'appuyant sur des outils et méthodes de plus en plus pertinents, on peut envisager pour le futur une amélioration des études de propagation d'incertitudes et de ces données voire un consensus sur ces dernières. Le travail de recensement des données existantes relatives aux quinze produits de fission du CBU préliminaire à l'élaboration des matrices du  $^{149}\text{Sm}$  et du  $^{103}\text{Rh}$  a montré des disparités parfois importantes entre les différentes sources. Afin de compléter la bibliothèque COMAC V0 et compte-tenu de la bonne évaluation de leurs sections de capture obtenue suite à l'interprétation du programme d'oscillation CBU, les isotopes  $^{143}\text{Nd}$ ,  $^{109}\text{Ag}$ ,  $^{152}\text{Sm}$ ,  $^{153}\text{Eu}$ ,  $^{145}\text{Nd}$  et  $^{95}\text{Mo}$ , les écarts calcul-expérience associés et leur

incertitudes pourraient être utilisés de la même manière dans le cadre d'une ré-estimation de leurs données nucléaires par RDN. Pour les autres isotopes, il serait intéressant d'élaborer des matrices de covariance associées à leur capture grâce au code CONRAD. **Il est également important de souligner que les matrices de covariance déterminées pour les sections de capture des isotopes  $^{149}\text{Sm}$  et  $^{103}\text{Rh}$  peuvent avoir des applications plus larges que les applications CBU (applications réacteur notamment).** Les travaux entrepris avec CONRAD les concernant dans le but de déterminer des matrices de covariance « a priori » issues des données EXFOR seront poursuivis au SPRC/LEPh.

Ces travaux de recherche se sont attachés prioritairement à l'évaluation et à la prise en compte des biais liés au bilan-matière et à l'antiréactivité des isotopes du CBU REP-MOx. Cependant, deux autres points de la méthodologie, dont un spécifique au traitement des combustibles MOx, pourraient faire l'objet d'études complémentaires. Il s'agit de la prise en compte d'un profil de taux de combustion et d'un vecteur plutonium enveloppes. Le profil de taux de combustion utilisé lors de l'application de la méthodologie au cas château de transport est un profil mesuré à La Hague sur des combustibles REP-UOx. Les assemblages MOx ne faisant pas l'objet actuellement d'un retraitement, nous ne disposons pas de telles mesures en puits de burn-up les concernant. Cependant, des travaux menés à EDF R&D [CBU-17] ont conduit à l'élaboration de profil issus de données cœurs mesurées en réacteur. Il pourrait être intéressant de quantifier comparativement l'impact de la prise en compte de ces données de profils dits « InCore ». Concernant le vecteur plutonium enveloppe, une étude d'optimisation monocritère pourrait être envisagée (sur la base de calculs réalisés avec la plateforme d'incertitudes de la DEN URANIE) afin de déterminer un vecteur proche de la composition du lot d'assemblages considérés.

## Annexe A

# Principales chaînes de filiation

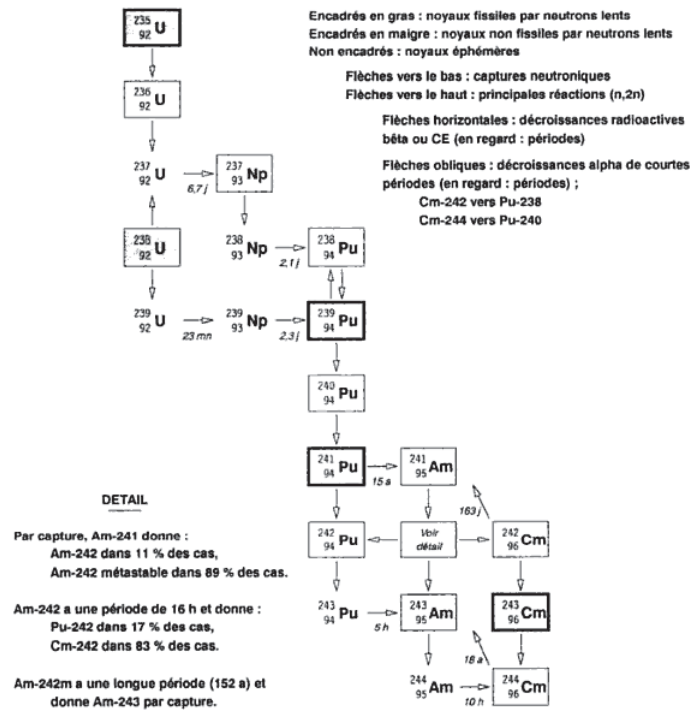


Figure A.1 – Chaîne d'évolution simplifiée de l'uranium



## Annexe B

# Le format standard ENDF-6

Quelques compléments quant au contenu et à l'organisation d'un fichier d'évaluation au format standard ENDF-6 sont présentés ici et les codes matériau pris en compte dans les développements de l'outil RIB pour l'importation de nouvelles matrices de covariance correspondant aux isotopes principaux du CBU REP-MOx sont donnés. Pour chaque isotope, désigné par un code matériau noté *MAT*, le fichier d'évaluation au format standard ENDF-6 se divise en différentes parties nommées « *FILE* ». Chacune d'entre elles présente les données relatives à une ou plusieurs grandeurs telles que sections efficaces, paramètres de résonance, covariances, ... Un numéro appelé « *MF* » est attribué à chacun des « *FILE* ». Le Tableau B.1 en donne quelques exemples d'intérêt.

<i>MF</i>	Contenu
1	Informations générales
2	Paramètres de résonance
3	Sections efficaces de réaction
4	Distributions angulaires
5	Distributions énergétiques
...	...
32	Covariances sur les paramètres de résonance
33	Covariances sur les sections efficaces
34	Covariances sur les distributions angulaires
35	Covariances sur les distributions énergétiques
...	...

**Tableau B.1 – Principaux *FILE* (*MF*) d'intérêt**

Chacune des grandeurs correspondant à chaque « *FILE* » est repérée par un code dit « *MT* » correspondant à une réaction particulière comme l'illustre le Tableau B.2 :



Isotope	Code Réaction <i>MT</i>
1	Section efficace totale
2	Diffusion élastique
3	Diffusion inélastique
...	...
16	Réaction (n, 2n)
...	...
18	Fission
...	...
102	Capture radiative
...	...
452	Multiplicité
...	...

**Tableau B.2 – Principaux *MT* d'intérêt**

Le premier ou les deux premiers chiffres du code matériau correspondent au numéro atomique (*Z*) de l'élément considéré. Le Tableau B.3 présente quelques exemples relatifs aux isotopes considérés dans les études CBU ainsi que quelques éléments de « structure » présents dans un cœur de REP.

<b>Isotope</b>	<b>Code MAT</b>
<b>Actinides</b>	
<sup>235</sup> U	9228
<sup>238</sup> U	9237
<sup>238</sup> Pu	9434
<sup>239</sup> Pu	9437
<sup>240</sup> Pu	9440
<sup>241</sup> Pu	9443
<sup>242</sup> Pu	9446
<sup>241</sup> Am	9543
<b>Produits de fission</b>	
<sup>95</sup> Mo	4234
<sup>99</sup> Tc	4331
<sup>101</sup> Ru	4440
<sup>103</sup> Rh	4525
<sup>109</sup> Ag	4731
<sup>133</sup> Cs	5525
<sup>143</sup> Nd	6028
<sup>145</sup> Nd	6034
<sup>147</sup> Sm	6234
<sup>149</sup> Sm	6240
<sup>150</sup> Sm	6243
<sup>151</sup> Sm	6246
<sup>152</sup> Sm	6249
<sup>153</sup> Eu	6331
<sup>155</sup> Gd	6434
<b>Structure</b>	
H2O	125
<sup>10</sup> B	525
<sup>56</sup> Fe	2631
<sup>52</sup> Cr	2431
<sup>58</sup> Ni	2825

**Tableau B.3 – Codes Matériau MAT des isotopes du CBU et de « structure » utilisés dans l’outil RIB**

## Annexe C

# Marginalisation rétroactive

La technique de marginalisation rétroactive implémentée dans CONRAD et utilisée dans la seconde approche de détermination d'une matrice de covariance associée à la capture du  $^{149}\text{Sm}$  considère les trois types de paramètres suivants :

- les observables provenant des expériences considérées ;
- les paramètres « latents » présents dans les modèles décrivant les sections efficaces de réaction ne pouvant être déterminés seuls tels que l'espacement moyen entre résonances ;
- les paramètres dits de « nuisance » relatifs aux paramètres expérimentaux tels que bruit de fond, normalisation, température, incertitudes sur la composition de l'échantillon utilisé, détériorant la précision des mesures et se répercutant sous forme d'une incertitude systématique sur les observables ajustées ;

La matrice de covariance des paramètres de modèle peut être définie par blocs de la manière suivante :

$$M_{param} = \begin{pmatrix} M_{modèle} & M_{nuisance,modèle} \\ M_{nuisance,modèle} & M_{nuisance} \end{pmatrix}$$

avec  $M_{modèle}$  la matrice de covariance des paramètres de modèle à ajuster ;  $M_{nuisance}$  la matrice de covariance des paramètres de nuisance. CONRAD permet de lier les paramètres de modèle décrivant la section efficace de réaction et les paramètres de nuisance et de calculer leurs corrélations. L'effet des paramètres de nuisance est absorbé dans les paramètres de modèle. La matrice  $S = (S_{modèle} S_{nuisance})$  contient les sensibilités aux paramètres des expériences, simulées par CONRAD. La matrice de covariance associée à la simulation des expériences peut ainsi s'écrire :

$$M_{simulation} = S \cdot M_{param} \cdot S^t$$

La marginalisation analytique va permettre de reproduire les covariances dans une nouvelle matrice « marginalisée », notée  $M_{modèle}^*$ , qui prendra également en compte les covariances de la matrice  $M_{nuisance}$ . Deux hypothèses sont alors prises en considération :

- au moins autant de points expérimentaux sont considérés que de paramètres de modèle ;
- les vecteurs de sensibilité sont linéairement indépendants ;

ce qui équivaut à l'inversibilité du produit  $S_{modèle}^t \cdot S_{modèle}$ . On cherche à obtenir la matrice « a posteriori » que l'on notera  $M_{modèle}^*$  des paramètres de modèle satisfaisant :

$$S_{modèle} \cdot M_{modèle}^* \cdot S_{modèle}^t = M_{simulation} = S \cdot M_{param} \cdot S^t$$

soit

$$M_{modèle}^* = (S_{modèle}^t \cdot S_{modèle})^{-1} \cdot S_{modèle}^t \cdot S \cdot M_{param} \cdot S^t \cdot S_{modèle} \cdot (S_{modèle}^t \cdot S_{modèle})^{-1}$$

après multiplication à gauche par  $S_{modèle}^t$  et à droite par  $S_{modèle}$  et inversion du produit  $S_{modèle}^t \cdot S_{modèle}$ .

## Annexe D

# Méthode des échantillons corrélés

Dans le cadre d'une simulation de transport des neutrons par méthode Monte-Carlo, les différentes interactions ayant lieu au cours de leur cheminement dans le milieu considéré sont généralement représentées par deux opérateurs :

- l'opérateur de transport que l'on notera  $T(r \rightarrow r', E, \Omega)$ . Celui-ci traduit la probabilité qu'a un neutron de parcourir en ligne droite la distance entre  $r$  et  $r'$  sans subir de collision. Il permet de traduire la densité entrante en un point de collision en fonction de la densité sortante.
- l'opérateur de collision,  $C(r, E \rightarrow E', \Omega \rightarrow \Omega')$ , qui représente le nombre de neutrons sortants dans l'intervalle  $dE'd\Omega'$  après avoir subi une collision au point de coordonnées  $(r, E, \Omega)$ . Il permet de traduire en un point de collision la densité sortante en fonction de la densité entrante.

Ces deux opérateurs permettent alors de définir les formes intégrales des densités de collision respectivement entrante et sortante

$$\Psi(r, E, \Omega) = \iiint \Psi(r', E', \Omega') \mathcal{K}(r' \rightarrow r, E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega) dr' dE' d\Omega' + \Psi_0(r, E, \Omega) \quad (D.1)$$

$$\chi(r, E, \Omega) = \iiint \Psi(r', E', \Omega') \mathcal{L}(r' \rightarrow r, E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega) dr' dE' d\Omega' + \chi_0(r, E, \Omega) \quad (D.2)$$

avec  $\mathcal{K}$  et  $\mathcal{L}$  les noyaux de transport et de collision définis par :

$$\mathcal{K}(r' \rightarrow r, E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega) = C(r, E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega) T(r' \rightarrow r, E, \Omega) \quad (D.3)$$

$$\mathcal{L}(r' \rightarrow r, E' \rightarrow E, \Omega' \rightarrow \Omega) = T(r \rightarrow r', E, \Omega) C(r, E \rightarrow E', \Omega \rightarrow \Omega') \quad (D.4)$$

et  $\Psi_0(r, E, \Omega)$ , la densité de première collision (densité des neutrons subissant leur première collision après leur émission par la source),  $\chi_0(r, E, \Omega) = S(r, E, \Omega)$ , le terme source (densité des neutrons sortants au point de coordonnées  $(r, E, \Omega)$ ). En réécrivant la densité de collision entrante en notant  $X \equiv (r, E, \Omega)$ , il vient :

$$\Psi(X) = \iiint \Psi(X') \mathcal{K}(X' \rightarrow X) dX' + \Psi_0(X) \quad (D.5)$$

Cette équation possède une solution de la forme :

$$\Psi(X) = \sum_{n=1}^{\infty} \int \dots \int \left[ \prod_{i=1}^n K(X_{i-1} \rightarrow X_i) dX_{i-1} \right] . S_0(X_0 \rightarrow X_1) dX_0 \quad (D.6)$$

La contribution au bout de  $n$  collisions est représentée par chaque terme de la somme. Lors d'une perturbation d'un paramètre de la simulation (D.6) devient :

$$\Psi(X)^* = \sum_{n=1}^{\infty} \int \dots \int \left[ \prod_{i=1}^n K^*(X_{i-1} \rightarrow X_i) dX_{i-1} \right] . S_0(X_0 \rightarrow X_1) dX_0 \quad (D.7)$$

Cette formulation peut se réécrire sous la forme :

$$\Psi(X)^* = \sum_{n=1}^{\infty} \int \dots \int \left[ \prod_{i=1}^n \frac{K^*(X_{i-1} \rightarrow X_i)}{K(X_{i-1} \rightarrow X_i)} K(X_{i-1} \rightarrow X_i) dX_{i-1} \right] . S_0(X_0 \rightarrow X_1) dX_0 \quad (D.8)$$

$$\Psi(X)^* = \sum_{n=1}^{\infty} \int \dots \int \left[ \prod_{i=1}^n a(X_{i-1} \rightarrow X_i) K(X_{i-1} \rightarrow X_i) dX_{i-1} \right] . S_0(X_0 \rightarrow X_1) dX_0 \quad (D.9)$$

avec  $a(X_{i-1} \rightarrow X_i)$  le terme de pondération s'appliquant aux évènements de la simulation de référence (non perturbée). On peut alors exprimer la perturbation  $\Delta\Psi = \Psi^* - \Psi$  par :

$$\Delta\Psi = \sum_{n=1}^{\infty} \int \dots \int \left[ \prod_{i=1}^n a(X_{i-1} \rightarrow X_i) - 1 \right] . \left[ \prod_{i=1}^n K(X_{i-1} \rightarrow X_i) dX_{i-1} \right] . S_0(X_0 \rightarrow X_1) dX_0 \quad (D.10)$$

où la perturbation apparaît directement en fonction de la situation de référence. Le terme  $\prod_{i=1}^n a(X_{i-1} \rightarrow X_i) - 1$  représente la pondération des évènements mise en place pour calculer la perturbation et le terme  $\prod_{i=1}^n K(X_{i-1} \rightarrow X_i) dX_{i-1}$  correspond à la simulation non-perturbée.