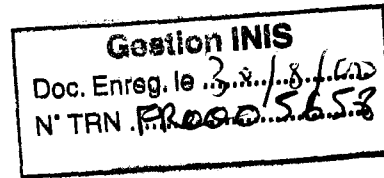
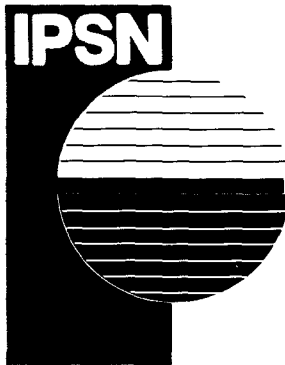


Pub. n° 99003477



FR0005658



**Etude du risque de criticité
dans les entreposages de déchets radioactifs
contenant de l'uranium enrichi en ²³⁵U**

Olivier COUASNON

Génie Atomique 1998/99

INSTN CEA Saclay

Stage Mars/Juin 1999

INSTITUT DE PROTECTION ET DE SURETE NUCLEAIRE

Département de Protection et d'Etude des Accidents

Service d'Etudes de Criticité

CEA\IPSN\DPEA\SEC

Fontenay-Aux-Roses



Remerciements

Je tiens à remercier M. COUSINOU, chef du Service d'Etudes de Criticité, pour son accueil au sein de ce service, ainsi que son Adjoint Véronique ROUYER.

Je remercie également Laurence LE BAIL, responsable de mon stage, ainsi que tous les membres du service pour leur aide, leurs conseils et leur disponibilité, notamment M. J. ANNO ainsi qu'Olivier JACQUET, Isabelle GUIMIER et Caroline LAVARENNE.

Sommaire

1	INTRODUCTION	2
1.1	Sujet de l'étude et démarche générale	2
1.2	Contexte du stage	2
1.3	Le Risque de criticité	3
1.4	Paramètres influençant le bilan neutronique	4
1.5	Codes de calculs utilisés en criticité	5
2	ETUDE DU RISQUE DE CRITICITÉ DANS LES ENTREPOSAGES DE DÉCHETS RADIOACTIFS CONTENANT DE L'URANIUM ENRICHÉ EN ²³⁵U	8
2.1	Présentation des données de base de l'étude	8
2.2	Réalisation de l'abaque donnant le nombre de fûts admissible en fonction du volume des fûts	11
2.3	Variation des paramètres de l'étude	17
2.4	Comparaison de valeurs de Keff obtenues par la procédure CRISTAL.....	26
3	CONCLUSION	29
4	BIBLIOGRAPHIE	30

Table des illustrations

Graphe 1 - Keff + 3 σ du milieu fissile considéré en fonction du rapport de modération.....	11
Graphe 2 - Keff + 3 σ du milieu fissile considéré en fonction de l'épaisseur de la couronne d'eau. 12	
Graphe 3 - (Keff + 3 σ)max. en fonction du nombre de fûts en réseau cubique au pas carré	13
Graphe 4 - Nombre maximal admissible de fûts en fonction du volume des fûts	14
Graphe 5 - Nombre maximal admissible de fûts en fonction du volume des fûts à H/U donné et optimal	15
Graphe 6 - Comparaison des abaques obtenus par deux critères d'admissibilité différents.....	16
Graphe 7 - Valeurs du K _{eff} + 3 σ pour différents milieux et couronnes.....	25



1 INTRODUCTION

1.1 SUJET DE L'ETUDE ET DEMARCHE GENERALE

Les Installations Nucléaires de Base génèrent des déchets radioactifs contenant suivant les cas plus ou moins de matière fissile. Ces déchets doivent le plus souvent être entreposés sur le site dans l'attente de traitement ultérieur ou de stockage définitif, et ce dans des conditions "sûres", notamment du point de vue de la criticité.

Pour justifier de cette sous-criticité, les exploitants se réfèrent à des documents établis par le CEA, comme par exemple la note CEA-N-1291 [1]¹ de juin 1970 par le groupe de travail GT/MC4 de la Sous-Commission des Masses Critiques.

Cependant ces notes ne couvrent pas toutes les demandes des exploitants et doivent être par conséquent complétées.

Le but de ce stage a donc été d'établir des normes d'entreposage de fûts de déchets radioactifs pauvres contenant de l'uranium très enrichi en uranium 235.

L'étude est basée sur les configurations générales d'entreposages de déchets des installations de Pierrelatte.

Les normes d'entreposages ont été établies sur la base de codes de calcul en criticité.

1.2 CONTEXTE DU STAGE

1.2.1 L'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN)

L'Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire (IPSN) a pour mission de contribuer à la maîtrise des risques nucléaires et de leurs conséquences sur l'homme et l'environnement.

Sa spécificité est de mener conjointement des recherches et des expertises dans toutes les disciplines du risque. Il conduit notamment des recherches en sûreté, sécurité, radioprotection, radioécologie et criticité et s'appuie sur des collaborations avec ses homologues étrangers.

¹ Bibliographie disponible en fin de rapport



1.2.2 Le Département de Prévention et d'Etude des Accidents (DPEA)

Le DPEA est organisé autour de 3 pôles :

- le "pôle accidents" qui regroupe l'ensemble des moyens techniques du DPEA en matière de gestion des situations de crise et qui est chargé des études des situations accidentelles graves des Réacteurs à Eau sous Pression,
- le "pôle protection technique" qui est à la charge du Service d'Etudes et de Recherches en Aérocontamination et en Confinement,
- enfin, le "pôle criticité", qui réunit le Service d'Etudes de Criticité (SEC) et le Service de Recherches en Sûreté et Criticité (SRSC).

1.2.3 Le Service d'Etudes de Criticité (SEC)

Le Service d'Etudes de Criticité, a pour mission générale de mener des études concernant la maîtrise des risques de criticité dans les installations du cycle du combustible et les transports.

Dans ce cadre, il est chargé :

- d'assurer la maintenance et le développement de codes de calcul qualifiés, d'élaborer des guides et normes et de tenir à jour les recueils de données en matières de criticité,
- de définir, en liaison avec le Service de Recherches en Sûreté et Criticité (SRSC) et les partenaires concernés, les programmes expérimentaux de criticité nécessaires à la qualification des méthodes de calcul de criticité et d'en exploiter les résultats (CEA Valduc),
- de fournir aux unités de l'IPSN chargées de l'évaluation de la sûreté des installations nucléaires de base et des colis de transport de matières fissiles, des avis techniques sur les dispositions de prévention des risques de criticité,
- de mener des études concernant l'appréciation et la prévention des risques de criticité, éventuellement à la demande de concepteurs ou d'exploitants,
- de tenir à jour l'état des connaissances dans ses domaines de compétence.

Composé d'une vingtaine de personnes, ce Service se divise en deux bureaux. Le premier a pour rôle d'effectuer les études de criticité des installations du cycle du combustible et des transports. Le second centre ses activités sur le développement et la qualification des codes de calcul utilisés pour réaliser les études de criticité à l'IPSN et dans d'autres entreprises de l'industrie nucléaire.

1.3 LE RISQUE DE CRITICITE

La présence de matières fissiles dans une installation induit un risque spécifique, celui de criticité, résultant de la possibilité du déclenchement d'une réaction en chaîne incontrôlée. Le mécanisme du phénomène est fondamentalement le même que celui mis à profit dans les réacteurs nucléaires.



Un accident de criticité survenant dans une installation peut avoir des conséquences très graves pour le personnel d'exploitation (une vingtaine d'accidents dans le monde depuis 1945 dont plusieurs morts).

Dans le cas d'une réaction en chaîne, il va y avoir production de neutrons qui si elle n'est pas compensée par une perte suffisante, conduira à l'accident de criticité. Les conditions de criticité du milieu résultent du bilan de la production de neutrons par fissions et de leur perte par absorption et par fuite hors du milieu fissile. On caractérise l'état du système par son coefficient de multiplication effectif (K_{eff}) :

$$k_{eff} = \frac{\text{production}}{\text{absorption} + \text{fuite}}$$

Si $K_{eff} > 1$, le milieu est surcritique (production > absorption + fuite).

Si $K_{eff} < 1$, le milieu est sous-critique (production < absorption + fuite).

Si $K_{eff} = 1$, le milieu est critique (production = absorption + fuite).

La criticité d'un milieu peut donc se définir par sa capacité à entretenir par et en lui-même une réaction en chaîne.

1.4 PARAMETRES INFLUENÇANT LE BILAN NEUTRONIQUE

La connaissance de différents paramètres pouvant influencer la criticité d'un milieu permet un contrôle approprié d'installations abritant des matières radioactives. Les principaux paramètres caractéristiques dans le cadre de cette étude sont liés aux termes de production, d'absorption et de fuite des neutrons.

1.4.1 Production

Masse : La production de neutrons augmente avec le nombre de noyaux fissiles, c'est-à-dire la masse de matières fissiles. Dans des conditions déterminées, au dessus d'une certaine masse dite critique, le terme de production peut l'emporter sur l'absorption et la fuite : le système est alors surcritique.

Modération : La section efficace de fission de la plupart des noyaux fissiles est d'autant plus importante que l'énergie cinétique des neutrons incidents est faible. Les neutrons issus de fissions ayant une énergie cinétique élevée, le terme de production sera favorisé si ces neutrons sont ralentis (modérés) par diffusion sur des noyaux.

La perte d'énergie est maximale pour les noyaux légers et en particulier l'hydrogène.

Le rapport du nombre de noyaux d'hydrogène au nombre de noyaux fissiles dans la même unité de volume est appelé rapport de modération et noté H/U pour le cas d'un milieu fissile uranium.



1.4.2 Fuite

Densité : Plus un milieu de composition définie est dense, plus court sera le libre parcours moyen des neutrons dans ce milieu (diffusion des neutrons dans le volume). Pour un milieu à volume constant, le K_{eff} diminue quand la densité diminue.

Géométrie : Les fuites augmentent avec le rapport $\frac{\text{surface}}{\text{volume}}$ de la forme géométrique du milieu fissile. Si ce rapport augmente, le K_{eff} diminue.
A volume constant, la sphère est la forme la plus réactive de toutes (forme la plus pessimiste en criticité, entraînant la plus petite masse critique).

Réflexion : Il est nécessaire de tenir compte des réflexions habituelles (exemple : murs en béton) ou accidentelles (opérateurs, inondation) susceptibles d'intervenir dans les installations. Pour des unités en interaction (réseau de fûts) la valeur pessimiste de la réflexion appliquée sur chaque unité ne correspondra pas forcément à un réflecteur d'épaisseur infinie.

Interactions : Les neutrons peuvent s'échanger entre différents milieux multiplicateurs. A l'opposé, un récipient est dit isolé si aucun neutron provenant de fissions externes ne peut pénétrer à sa surface (c'est le cas d'un récipient entouré d'une épaisseur de 20 cm d'eau). L'interaction entre des fûts d'entreposage contenant de la matière fissile contribue à limiter le nombre de fûts maximal admissible afin de conserver une installation sous-critique. L'optimum des interactions ne peut être déterminé que par la modélisation et les codes de calculs car il met en jeu l'interdépendance de tous les paramètres.

1.4.3 Absorption

Poisons : La présence de poisons abaisse le K_{∞} puisqu'ils sont sources de captures. On n'utilisera pas de poisons dans cette étude afin de déterminer des valeurs enveloppes vis-à-vis du risque de criticité.

Hydrogène : Lorsque l'hydrogène est présent en quantité au sein de la matière fissile (sous forme d'eau par exemple), un effet poison important apparaît, et ce malgré sa section efficace microscopique de capture faible (0,33 barn) pour des neutrons thermiques.

1.5 CODES DE CALCULS UTILISES EN CRITICITE

L'étude d'un problème de neutronique ou de criticité peut être effectuée grâce à la résolution de l'équation du transport par une méthode déterministe éventuellement simplifiée, ou bien à l'aide d'une méthode probabiliste de type Monte-Carlo, simulant, à l'aide de tirages aléatoires, les événements de la vie d'une population de neutrons.



Chacune de ces méthodes présente ses avantages et inconvénients, définissant ainsi ses domaines d'application (les codes utilisant une méthode déterministe sont généralement plus rapides, mais encore limités quant à leur description géométrique : problèmes à une ou deux dimensions, sur des géométries simples ; ils sont en pratique utilisés pour l'élaboration de recueils de normes, pour lesquels le nombre de calculs à effectuer est très important).

Le schéma de calcul standard du SEC reposant sur l'enchaînement des codes MELODIE, APOLLO 1 et MORET 3, a été utilisé dans le cadre de cette étude (chapitres 2.1 à 2.4).

L'enchaînement des codes du futur formulaire de criticité français CRISTAL, notamment constitué des codes CIGALES, APOLLO 2 et MORET 4, en cours de qualification, a également été utilisé pour comparer les résultats obtenus par les différents schémas de calculs (chapitre 2.4).

1.5.1 MELODIE

MELODIE est un programme qui calcule les compositions atomiques de milieux fissiles à partir de lois de dilution (qui établissent les relations entre les rapports de modération et les concentrations). Il génère un fichier de données d'entrées du code APOLLO 1.

1.5.2 APOLLO 1

Ce code résout l'équation du transport par la méthode des probabilités de collisions.

Sur la base de la bibliothèque de sections efficaces CEA-86, il fournit les valeurs :

- du coefficient de multiplication du milieu fissile infini (K_{∞}),
- du Laplacien matière critique caractéristique du milieu multiplicateur (B^2_m),
- des sections efficaces macroscopiques autoprotégées, homogénéisées, et éventuellement condensées du milieu fissile, présentées dans un format accepté par les codes de calcul de criticité tels que MORET 3.

1.5.3 MORET 3

Le programme MORET 3 permet le calcul du coefficient de multiplication effectif (K_{eff}) de systèmes de géométrie complexe à 3 dimensions contenant de la matière fissile.

C'est un programme de simulation neutronique *tridimensionnel* et *multigroupe* qui applique la méthode Monte Carlo à la théorie du transport (simulation directe de l'histoire des neutrons à partir des lois de probabilité qui gouvernent chaque événement élémentaire).

La configuration géométrique à calculer est décomposée en volumes de formes élémentaires (sphères, cylindres, boîtes, cônes, etc.) sur lesquels on applique les opérations de la théorie des ensembles (intersection, réunion, etc.).



Les sections efficaces utilisées proviennent soit de la bibliothèque interne propre (MORET 3 fonctionne avec un nombre quelconque de groupes mais est couramment utilisé avec 16 groupes respectant le découpage de Hansen et Roach), soit d'autres bibliothèques externes issues d'un calcul préalable effectué par le code APOLLO 1.

On utilisera dans cette étude la bibliothèque de sections efficaces de Hansen et Roach pour décrire les milieux de structure (eau, béton, etc.) et les bibliothèques issues du calcul APOLLO pour le milieu fissile.

Des coefficients de réflexion différentiels (albédos sous forme de tables établies pour le découpage Hansen et Roach) peuvent simuler les réflexions environnantes sur le volume extérieur (sur du béton dans l'étude).

Remarque :

Le code MORET résout l'équation du transport par un processus d'itérations sur les sources appelées générations.

Pour chaque génération, une valeur du coefficient de multiplication est déterminée.

L'estimation du K_{eff} est calculée comme la moyenne des K_{eff} de chaque génération. Pour un nombre infini de générations, cette estimation convergerait vers l'espérance mathématique du K_{eff} .

En pratique on arrête le calcul lorsque l'incertitude statistique σ^2 , évaluée en même temps que le K_{eff} , devient inférieure à un critère de convergence.

Dans cette étude, on arrêtera les calculs lorsque la précision de $\sigma = 200$ pcm aura été atteinte.

Pour une distribution gaussienne, un intervalle de confiance à $\pm 3\sigma$ autour de la valeur moyenne correspond à une probabilité de 99,7 % que la valeur exacte appartienne à cet intervalle.

Ainsi, la valeur maximale vraisemblable du K_{eff} est donnée par $K_{eff\ moyen} + 3\sigma$.

² σ est inversement proportionnelle à la racine carrée du nombre de générations.



2 ETUDE DU RISQUE DE CRITICITE DANS LES ENTREPOSAGES DE DECHETS RADIOACTIFS CONTENANT DE L'URANIUM ENRICHIS EN ²³⁵U

2.1 PRESENTATION DES DONNEES DE BASE DE L'ETUDE

2.1.1 Description de l'entreposage réel

L'étude est basée sur les configurations générales d'entreposage de déchets des installations de Pierrelatte³ dont les caractéristiques générales sont :

- un enrichissement de l'uranium de 93,5% d'uranium 235 en valeur maximale rencontrée dans les déchets (qualité militaire),
- une masse maximale d'uranium enfûtable de 350 g,
- une modération de l'entreposage quelconque,
- une taille de fût en acier variant de 100 à 200 litres environ (118 litres communément),
- des déchets pauvres (répartition homogène dans chaque fût) pouvant être constitués de barrières de diffusion gazeuse endommagées, de gants et de films en polyéthylène, etc.,
- un entreposage cubique au pas carré des fûts de déchets de géométrie cylindrique.
- un niveau de gerbage moyen de 3 fûts en hauteur (6 fûts au maximum).

2.1.2 Modélisation de l'entreposage pour le jeu de données MORET

Modélisation de la géométrie de l'entreposage

L'entreposage a pour configuration un réseau constitué d'un empilement cubique de fûts disposés au pas carré. Ce réseau est fini et de taille variable (2*2*2 à 10*10*10 fûts).

Modélisation de la géométrie d'une maille du réseau

Chaque fût est assimilé à une maille cubique⁴ d'arête a (Cf. exemple de réseau ci-après).

Pour un fût de 100 litres par exemple, $a = \sqrt[3]{10^5} = 46,4 \text{ cm}$.

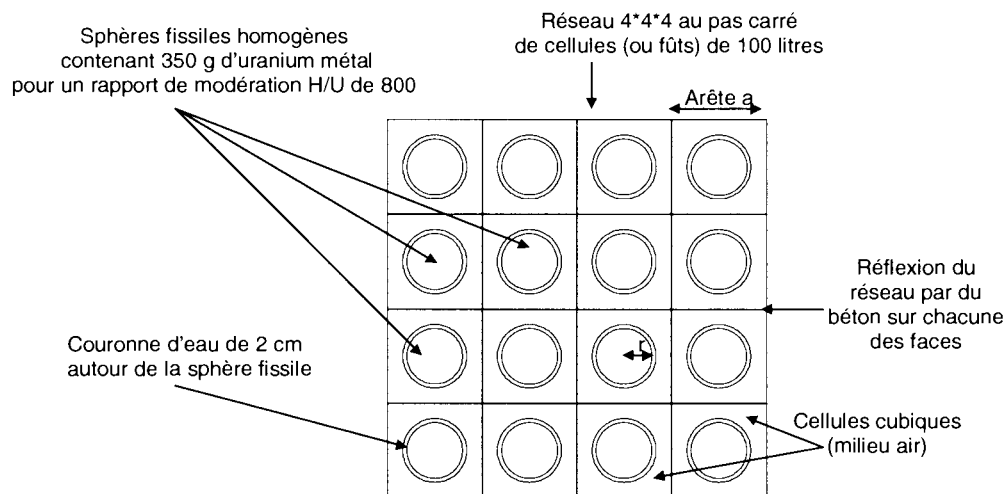
Cinq volumes de fûts ont été considérés dans cette étude : 20, 50, 100, 150 et 200 litres.

³ L'usine de Pierrelatte a été la première usine en date, en France, utilisant la diffusion gazeuse pour l'enrichissement de l'uranium (à des fins militaires). Elle est découpée en quatre unités : usine basse, moyenne, haute et très haute. Cette installation a permis de produire de l'uranium enrichi à toutes concentrations utilisables (dont de l'uranium très enrichi) et a expérimenté les différents prototypes de l'usine d'Eurodif (enrichissement à des fins civiles).

⁴ Une étude sur des mailles déformées [3] montre que la géométrie cubique donne des valeurs de K_{eff} enveloppes par rapport à des géométries cylindriques dont le rapport hauteur sur diamètre ne dépasse pas 3 [1].

Exemple de réseau en coupe

Réseau de fûts de 100 litres en empilement 4*4*4 :



Modélisation chimique du milieu fissile

Le milieu fissile est l'association de la matière fissile et du modérateur. Le milieu fissile de référence de cette étude est un mélange homogène d'uranium métal et d'eau.

Le vecteur isotopique retenu pour l'uranium métal est de 100% d'uranium 235. Bien qu'un tel enrichissement ne soit pas réaliste, il permet d'obtenir des valeurs enveloppes du coefficient de multiplication effectif (caractère conservatoire).

La masse d'uranium 235 contenue dans chaque fût est fixée à 350 grammes⁵ ce qui correspond à la masse maximale admise dans les fûts des installations de Pierrelatte (cohérence avec les normes déjà existantes).

Modélisation géométrique du milieu fissile

La nature des déchets permet d'assurer que la matière fissile est répartie de façon relativement homogène dans chaque fût. C'est pourquoi, on considère, dans la modélisation, la matière centrée dans chaque maille du réseau sous forme de sphère (il peut cependant y avoir des cas de sphères non centrées plus réactifs [2]).

⁵ Pour un système isolé, notons que la masse minimale critique, à la modération optimale de l'uranium métal pour un enrichissement de 93,5 % en uranium 235, est de 870 grammes.



La sphère est retenue car sa forme géométrique est la plus pessimiste vis-à-vis du risque de criticité pour un fût isolé.

La masse d'uranium 235 contenue dans chaque milieu fissile et le rapport de modération permettent de définir le rayon de la sphère fissile.

Exemple de calcul du rayon d'une sphère fissile :

La loi de dilution de l'uranium 235 métal dans l'eau (issue de MELODIE) donne la concentration C en uranium 235 dans le milieu fissile, telle que :

$$C(^{235}\text{U}) = \frac{M_{^{235}\text{U}}}{V_{\text{molaire soluté}} + \frac{M_{\text{H}_2\text{O}}}{2} \frac{H}{U}}$$

avec

$$M_{^{235}\text{U}} = 235 \text{ g / mol.}$$

$$M_{\text{H}_2\text{O}} = 18 \text{ g / mol.}$$

$$V_{\text{molaire soluté}} = 12,42 \text{ cm}^3 / \text{mol.}$$

Pour une masse de 350 g d'uranium 235, le rayon r de la sphère fissile varie alors en fonction de la concentration C :

$$\text{exemple : pour } \frac{H}{U} = 500, \text{ on a } C = 52.10^{-3} \text{ g / cm}^3$$

$$\text{et } r = \sqrt[3]{\frac{m}{C} \frac{3}{4\pi}} = \sqrt[3]{\frac{350}{52.10^{-3}} \frac{3}{4\pi}} = 11,71 \text{ cm}$$

Modélisation des milieux de structure

Une couronne d'eau d'épaisseur variable⁶, autour de la sphère représentant le milieu fissile, modélise l'effet de la modération externe et permet d'optimiser les interactions dans le réseau (couplages neutroniques entre les fûts).

La réflexion sur des parois en béton est prise en compte pour la totalité du volume extérieur au réseau de fûts. Les réflexions dues aux murs en béton sont majorées en considérant que les murs sont au contact du stockage (sur les 6 faces).

Les parois et le contenu des fûts (hors milieu fissile et couronne d'eau) ne sont pas pris en compte pour minimiser les absorptions hors du milieu fissile et donc conserver un caractère enveloppe à l'étude (il n'est donc pas tenu compte de la paroi en acier des fûts dans la description chimique des milieux de structure [2]).

⁶ On fera varier cette épaisseur de 0 à 5 cm

2.2 REALISATION DE L'ABAQUE DONNANT LE NOMBRE DE FÛTS ADMISSIBLE EN FONCTION DU VOLUME DES FÛTS

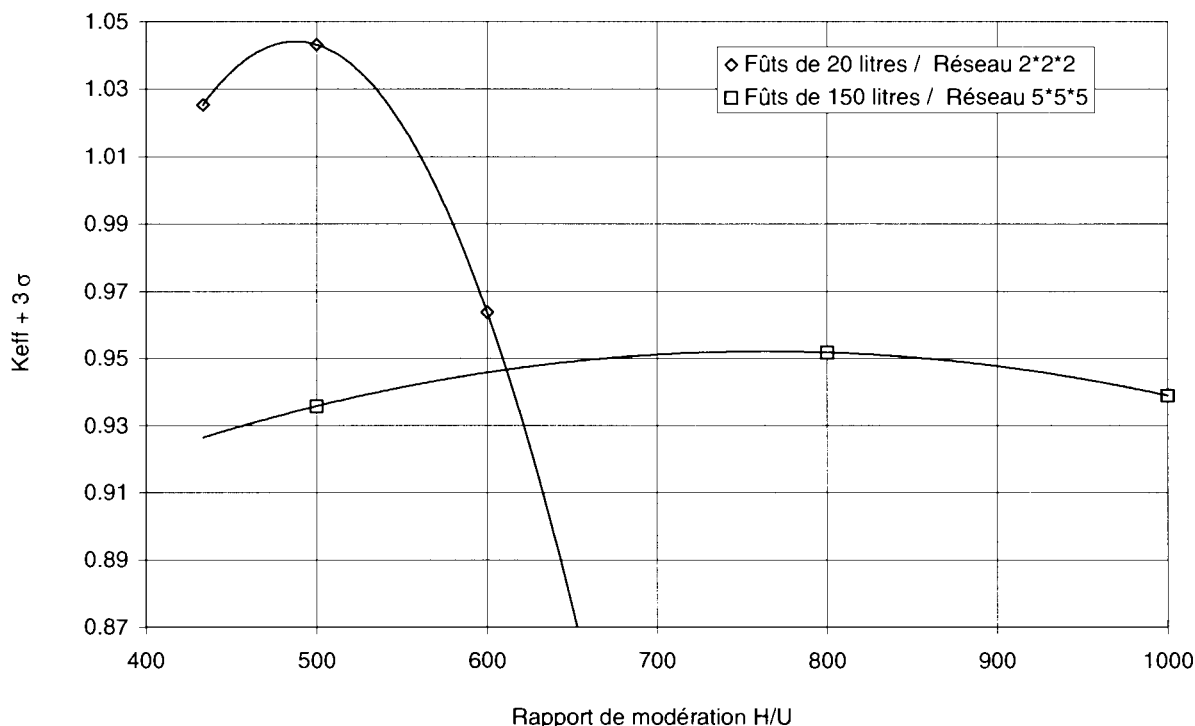
2.2.1 Données préliminaires

L'étude doit permettre d'établir une relation entre le volume des fûts et le nombre de ces fûts entreposables, au pas carré, de façon quelconque (c'est-à-dire sans obligatoirement respecter un réseau cubique) en conditions sûres du point de vue de la criticité.

De toutes les valeurs de $K_{\text{eff}}+3\sigma$ obtenues sont extraites les données enveloppes (Cf. tableau 1, chapitre 2.2.2), c'est-à-dire les valeurs à l'optimum de modération⁷ et à l'optimum d'épaisseur de couronne d'eau.

Le rapport de modération optimal d'un système unitaire contenant un milieu uranium métal dans l'eau et réfléchi par 20 cm d'eau est de l'ordre de $H/U=400$. Dans le réseau considéré dans cette étude, plus la taille des fûts et du réseau est grande, plus le rapport de modération optimal est important (graphe ci-après).

En effet, l'augmentation du rapport de modération accroît la taille de la sphère fissile et augmente les angles solides entre les sphères ce qui favorise les interactions et augmente le K_{eff} ⁸.



Graphe 1 - $K_{\text{eff}} + 3\sigma$ du milieu fissile considéré en fonction du rapport de modération

Fûts en réseau cubique au pas carré - Milieu fissile homogène : uranium 235 métal (350g) et eau dans une sphère

⁷ Le K_{eff} nu d'une sphère de métal massif est moins élevé que celui d'une sphère à l'optimum de modération. De plus, les angles solides entre les sphères métal sont inférieurs à ceux entre les sphères à l'optimum de modération.

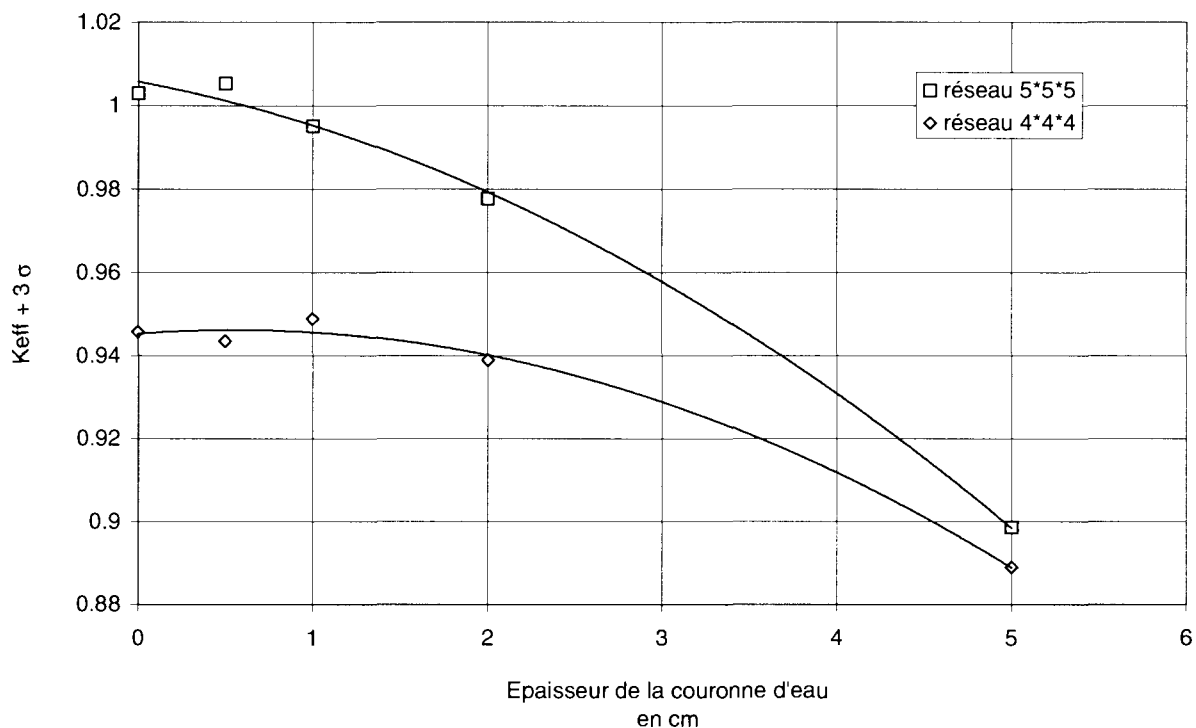
⁸ Pour un rapport de modération très élevé, la capture des neutrons par l'hydrogène prédomine et le K_{eff} chute.

Dans le graphe précédent, pour un petit réseau (2*2*2) avec des fûts de petite taille (20 litres), on observe un optimum pour H/U=500 car l'effet de densité de l'uranium 235 dans le milieu fissile prédomine sur l'effet des interactions entre les fûts. Au contraire, pour un réseau plus important avec une taille de maille plus grande, on trouve un optimum de H/U=800 car les interactions entre les fûts prédominent sur la réactivité propre de chaque fût.

Les couplages entre mailles sont également optimisés en faisant varier une couronne d'eau autour de la sphère fissile.

Dans cette couronne d'eau, les neutrons émis par la sphère ou ayant fui d'une autre maille ont la possibilité d'être réfléchis, d'être modérés (on parle de modération externe) ou d'être absorbés.

La variation de l'épaisseur de couronne d'eau met en compétition ces effets et l'on observe un optimum de la valeur du $K_{\text{eff moyen}} + 3\sigma$ pour le réseau à une épaisseur donnée, voire nulle, de la couronne d'eau (Cf. graphe ci-après).



Graphe 2 - $K_{\text{eff}} + 3\sigma$ du milieu fissile considéré en fonction de l'épaisseur de la couronne d'eau
Fûts de 100 litres en réseau cubique au pas carré
H/U=500 - Milieu fissile homogène : uranium 235 métal (350g) et eau dans une sphère

Le graphe 2 montre que, pour le réseau 4*4*4, l'épaisseur de couronne d'eau majorant le $K_{\text{effmoyen}}+3\sigma$ est de 1 cm, alors qu'elle est nulle pour un réseau 5*5*5.

En fait, en général, on montre que plus les réseaux sont grands, plus le $K_{\text{eff max}}$ est obtenu pour une modération interstitielle nulle (épaisseur de couronne d'eau nulle).

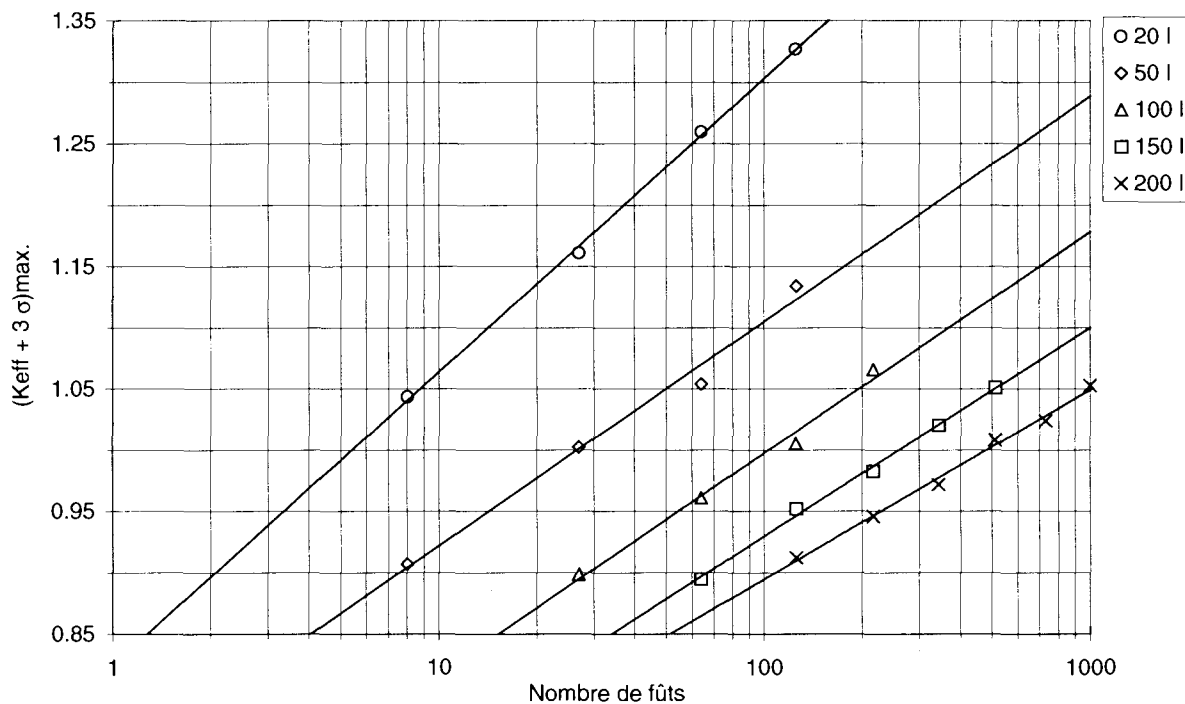
2.2.2 Synthèse des résultats enveloppes

Le tableau suivant récapitule les valeurs du $K_{eff} + 3\sigma$ à l'optimum de modération et d'épaisseur de couronne d'eau en fonction du volume des fûts pour les différents niveaux de gerbage :

$(K_{eff} + 3\sigma)_{max}$	Nombre de fûts et niveau de gerbage du réseau								
	8	27	64	125	216	343	512	729	1000
Volume des fûts en litres	2*2*2	3*3*3	4*4*4	5*5*5	6*6*6	7*7*7	8*8*8	9*9*9	10*10*10
20	1,043	1,161	1,271	1,327					
50	0,907	1,002	1,054	1,134					
100		0,898	0,961	1,005	1,066				
150			0,895	0,952	0,983	1,020	1,051		
200				0,912	0,946	0,972	1,008	1,024	1,053

Tableau 1 - $(K_{eff} + 3\sigma)_{max}$ en fonction du volume des fûts en réseau

A partir de ces données enveloppes, pour chaque volume de fût donné, est tracée la courbe donnant le $K_{eff} + 3\sigma$ en fonction du nombre de fûts (graphe ci-après).



Graphe 3 - $(K_{eff} + 3\sigma)_{max}$ en fonction du nombre de fûts en réseau cubique au pas carré
Milieu fissile homogène : uranium 235 métal (350g) et eau dans une sphère

En coordonnées log.log. les courbes peuvent être assimilées à des droites et les nombres admissibles de fûts de 20 litres sont obtenus par une extrapolation linéaire.

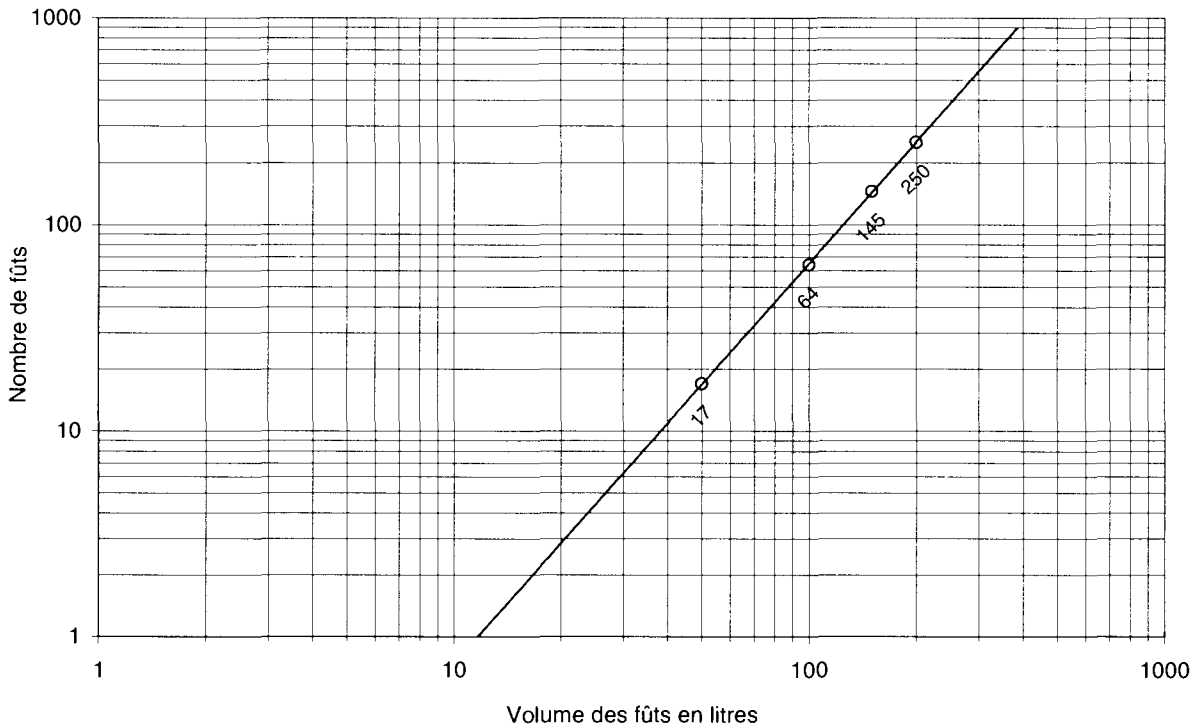
2.2.3 Application du critère d'admissibilité aux résultats

Le nombre de fûts maximal admissible pour un volume donné est déterminé en considérant la valeur obtenue pour le critère d'admissibilité⁹ suivant : $K_{eff} + 3\sigma \leq 0,95$ avec $\sigma = 0,002$. L'application de ce critère donne une marge de sécurité vis-à-vis des incertitudes des calculs et de la modélisation.

2.2.4 Nombre de fûts maximal admissible en fonction du volume des fûts

On détermine le nombre de fûts maximal admissible en fonction du volume des fûts en reportant le critère d'admissibilité sur les courbes précédentes¹⁰ (courbes donnant le $K_{eff} + 3\sigma$ en fonction du nombre de fûts pour chaque volume de fût).

Ces données permettent d'obtenir l'abaque ci-après.



Grphe 4 - Nombre maximal admissible de fûts en fonction du volume des fûts pour un entreposage en réseau cubique au pas carré réfléchi par du béton (fûts contenant 350 g d'uranium 235) à l'optimum de modération et d'épaisseur de couronne d'eau

⁹ Ce critère est un critère d'admissibilité usuel pour les forts enrichissements. Il tient compte des incertitudes sur la connaissance exacte de certaines données nucléaires comme les sections efficaces.

¹⁰ Pour $K_{eff} + 3\sigma = 0,95$, avec une loi de régression polynomiale.

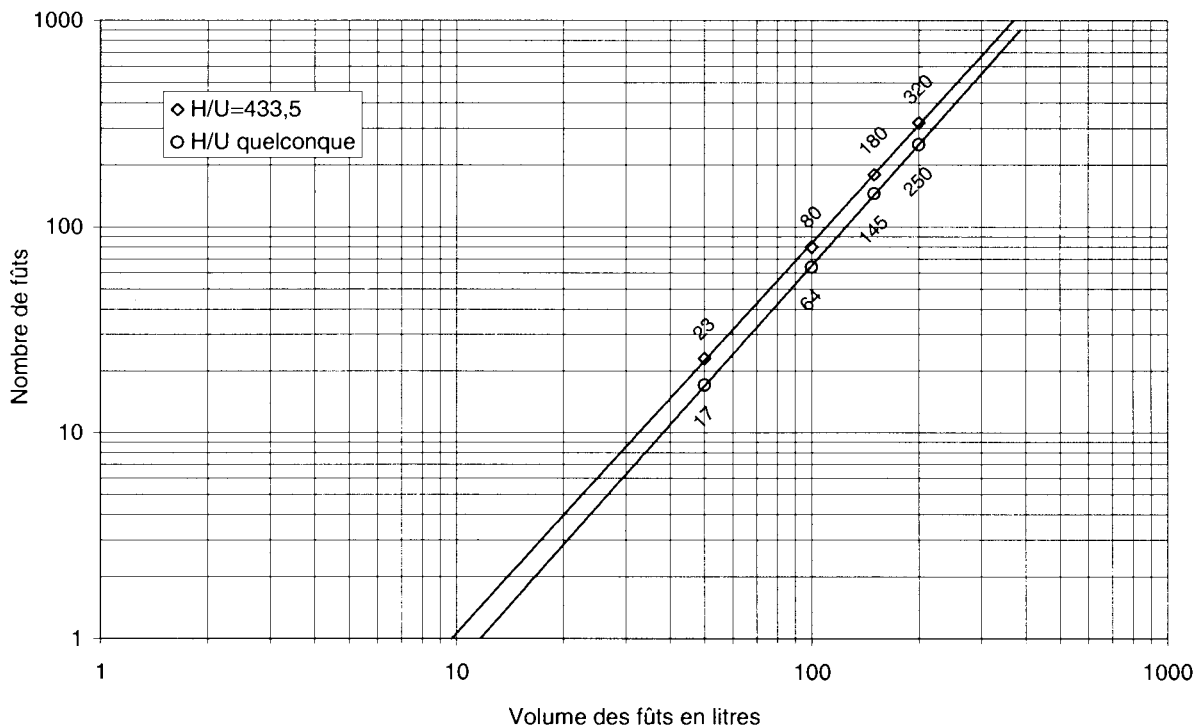
En coordonnées log.log. la courbe peut être assimilée à une droite et les nombres admissibles de fûts sont obtenus par une extrapolation linéaire qui traduit la loi de variation la plus vraisemblable, tout en étant conservatoire.

Dans les conditions définies ci-dessus, il est possible de stocker, en justifiant de la sous-criticité du réseau, par exemple jusqu'à 91 fûts de 118 litres.

Cependant, une étude plus fine sur les nombres de fûts admissibles de volume inférieur à 50 litres, en empilement de moins de 8 fûts, sera menée dans la prolongation de ce stage, afin de vérifier la sous-criticité de tels stockages (notamment un empilement de 3 fûts de 20 litres). Cela permettra de vérifier ou d'infirmer l'hypothèse d'extrapolation linéaire dans ces conditions.

Remarque :

Compte-tenu des commentaires du chapitre 2.2.1, on vérifie dans le graphe ci-après, que la courbe obtenue à l'optimum de modération est plus restrictive que la courbe pour un H/U donné (ici H/U=433,5 correspondant à une concentration de 60 g/l d'uranium métal).



Graphe 5 - Nombre maximal admissible de fûts en fonction du volume des fûts à H/U donné et optimal pour un entreposage en réseau cubique au pas carré réfléchi par du béton (fûts contenant 350 g d'uranium 235)

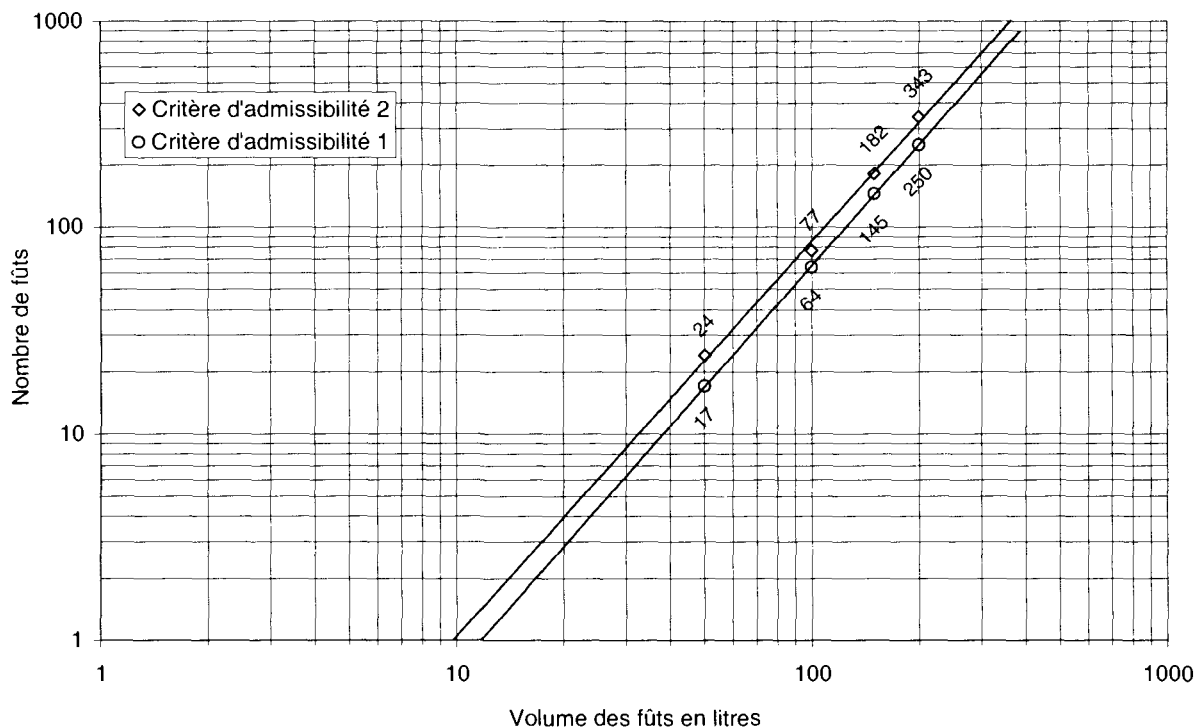
2.2.5 Application d'un autre critère d'admissibilité

On peut utiliser un autre critère d'admissibilité (qu'on appellera critère d'admissibilité 2 sur le graphe ci-après) donnant :

nombre admissible de fûts = 0.7 x nombre critique de fûts [4]

Le nombre critique de fûts est déterminé sur les courbes donnant le $K_{\text{eff}} + 3\sigma$ en fonction du nombre de fûts pour chaque volume de fût, par l'application du critère : $K_{\text{eff}} + 3\sigma \leq 1$.

La courbe obtenue est moins restrictive que celle du graphe 4 précédent (critère d'admissibilité 1).



Graphe 6 - Comparaison des abaques obtenus par deux critères d'admissibilité différents



2.3 VARIATION DES PARAMETRES DE L'ETUDE

2.3.1 Augmentation de la surface d'interaction des sphères fissiles

Pour cette étude, on augmente le volume de la sphère fissile tout en conservant un rapport de modération et une masse constants (effet de densité).

On modifie donc les concentrations atomiques, qui sont fonction du volume, dans le fichier APOLLO.

On vérifie que pour un rapport de modération donné, une diminution de la concentration en uranium, donc une augmentation du volume sphérique de matière fissile, entraîne une diminution du coefficient de multiplication effectif (voir tableau comparatif ci-après pour différentes tailles de fûts en réseaux, différentes épaisseurs de couronnes et différents rapports de modération¹¹).

Comparaisons des ($K_{eff} + 3\sigma$)max. pour les différentes géométries du milieu fissile								
Milieu fissile	Volume des fûts en litres	H/U	Epaisseur de couronne d'eau en cm	Rapport du volume dilaté au volume initial	Réseaux			
					2*2*2	3*3*3	4*4*4	6*6*6
Sphères initiales	20	500	0	-	1,043			
	20	600	0	-			1,271	
	50	800	0,5	-	0,901			
	50	500	0	-		0,982		
	100	600	0	-			0,953	
	200	800	1	-				0,940
Sphères dilatées	20	500	0	1,08	1,031			
	20	600	0	1,14			1,273	
	50	800	0,5	1,02	0,901			
	50	500	0	1,08		0,970		
	100	600	0	1,14			0,928	
	200	800	1	1,32				0,895

Tableau 2 - $K_{eff} + 3\sigma$ comparés de sphères initiales et dilatées

La diminution de la densité en noyaux fissiles l'emporte sur les couplages neutroniques entre fûts dans le réseau.

Pour quelques cas, par exemple des fûts de 20 litres dans un réseau 4*4*4, on obtient pour une sphère dilatée une valeur de $K_{eff} + 3\sigma$ légèrement supérieure à celle de la sphère initiale (de 200 à 300 pcm de plus ce qui ne représente pas une valeur significative).

¹¹ La totalité des résultats ne figure pas dans le tableau. On a fait varier le rapport du volume dilaté sur le volume initial sur une gamme de 1,02 à 1,60 pour quelques cas. L'augmentation du volume diminue le coefficient de multiplication effectif dans chaque cas.



L'augmentation de la surface d'interaction des sphères fissiles n'entraîne donc pas de cas de réseau plus réactifs qu'initialement. En conséquence, l'étude faite sur des fûts contenant 350 g d'uranium 235 est valable quelle que soit la densité de matière fissile.

2.3.2 Passage d'une géométrie sphérique à cylindrique

La sphère représente la géométrie la plus pessimiste pour le milieu fissile pour une unité isolée.

Les fuites augmentent avec le rapport $\frac{\text{surface}}{\text{volume}}$ de la forme géométrique du milieu fissile. Si ce rapport augmente, le K_{eff} diminue.

Au passage d'une sphère à un orthocylindre, les fuites sont favorisées car la surface augmente pour un volume constant.

Cependant, en réseau, les interactions (couplages neutroniques) augmentent également, d'où l'intérêt de vérifier l'absence de cas de réseaux où la géométrie cylindrique serait plus pénalisante.

Les résultats de calcul (tableau comparatif ci-après) montrent que dans le cas d'un réseau, le remplacement d'une sphère fissile par un orthocylindre, à volume constant, permet comme pour une unité isolée, de diminuer le K_{eff} .

Si l'on augmente le volume de l'orthocylindre initial fissile (comme précédemment avec les sphères) tout en conservant un rapport de modération constant, les valeurs de $K_{\text{eff}} + 3\sigma$ obtenues restent toutes inférieures à celles des orthocylindres initiaux (valeurs comparées repérées en bleu). Le rapport du volume dilaté sur le volume initial a été cette fois-ci choisi de façon à ce que le volume fissile dilaté occupe la majeure partie de la maille.

Comparaisons des ($K_{\text{eff}} + 3\sigma$) max. pour les différentes géométries du milieu fissile							
Milieu fissile	Volume des fûts en litres	H/U	Epaisseur de couronne d'eau en cm	Rapport du volume dilaté au volume initial	Réseaux		
					2*2*2	3*3*3	6*6*6
Orthocylindres à volume constant	20	500	0	-	1,037		
	20	500	0,5	-	1,037		
	50	500	0	-		0,977	
	50	800	0	-		1,000	
	50	800	0,5	-	0,900		
	200	800	1	-			0,929
Orthocylindres dilatés	20	500	0,5	2,04	1,004		
	50	800	0	3,59		0,964	
	50	800	0,5	3,31	0,794		
	200	800	1	13,02			0,765

Tableau 3 - $K_{\text{eff}} + 3\sigma$ comparés d'orthocylindres

2.3.3 Effet de la distribution de la concentration en Uranium 235 dans la sphère fissile

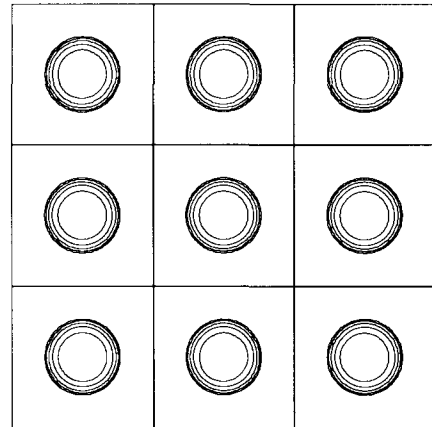
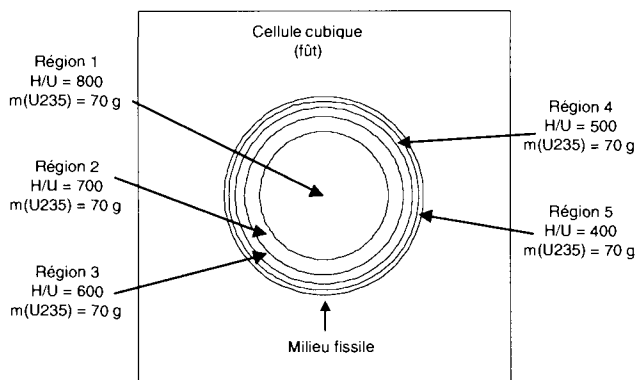
Dans cette partie de l'étude la sphère est divisée en 5 régions contenant la même masse mais des concentrations différentes (et donc des volumes différents).

Deux cas sont étudiés : une distribution de la concentration en matière fissile croissante ou décroissante suivant le rayon de la sphère.

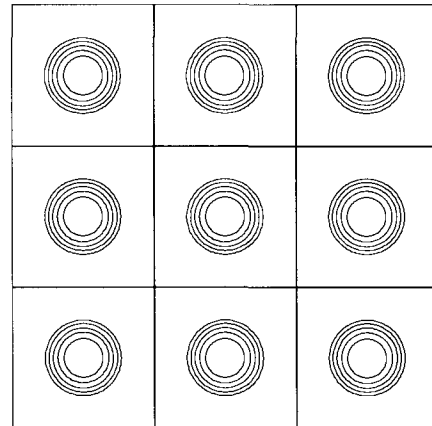
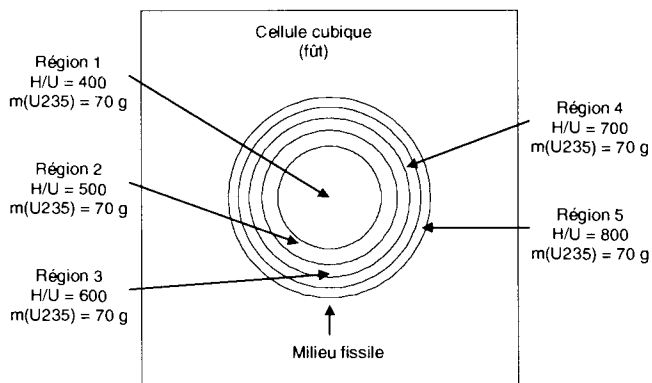
Les distributions sont arbitraires et ne cherchent qu'à mettre en évidence des cas plus réactifs que pour une distribution homogène.

L'étude est réalisée sur des fûts de 100 litres en réseau 3*3*3 (schémas en coupe ci-dessous) :

Cas 1 - Sphère à concentration croissante suivant le rayon :



Cas 2 - Sphère à concentration décroissante suivant le rayon :



On compare ensuite les coefficients de multiplication effectifs obtenus pour ces deux cas avec ceux obtenus pour une sphère de concentration moyenne équivalente (somme des masses fissiles sur la somme des volumes des 5 régions).

La sphère homogène équivalente, dans les deux cas précédents, a une concentration de 43,4 g/l soit un rapport de modération de 600.

Les deux cas de distribution de la concentration montrent des configurations plus réactives qu'une sphère de concentration moyenne équivalente homogène (tableau ci-après).

Volume des fûts en litres	Réseau	Epaisseur de la couronne d'eau en cm	Cas 1 : $K_{eff} + 3\sigma$	Cas 2 : $K_{eff} + 3\sigma$	Cas d'une sphère à H/U=600 (concentration moyenne équivalente)
100	3*3*3	0	0,923	0,901	0,887

Tableau 4 - Comparaison de sphères à H/U croissant et décroissant suivant le rayon

La distribution du flux des neutrons thermiques n'est pas uniforme dans le cas d'une concentration homogène de la matière. Là où le flux de neutrons est faible, il y a une moins bonne utilisation de la matière fissile. Une meilleure répartition de la matière fissile, plus dense vers le centre, dans la zone de grande importance neutronique [5], qu'en périphérie, soit une distribution décroissante (cas 2) de la concentration, permet de mieux utiliser la matière fissile [6] et donc d'augmenter la réactivité vis-à-vis d'un même milieu à concentration homogène. Cette distribution est toutefois pessimiste vis-à-vis de la réalité.

Pour ces deux répartitions de la concentration, choisies arbitrairement, le cas le plus réactif obtenu est paradoxalement celui dont la concentration en uranium 235 est croissante suivant le rayon de la sphère, soit le cas 1 (ce cas n'est pas réaliste). La sphère est mieux modérée au centre que sur les bords et la concentration en uranium 235 est plus importante sur la périphérie. Les neutrons plus rapides en sortie de la surface extérieure des milieux fissiles (le volume périphérique étant le plus petit et le moins bien modéré), constitués par les cinq régions de la sphère, favorisent les interactions. On peut également faire une analogie avec les travaux de GOERTZEL, qui avait démontré qu'on pouvait avoir une augmentation de la réactivité en simulant une augmentation de concentration pelliculaire à la surface extérieure de la sphère fissile par une fonction delta [7].

Les résultats du calcul pour plusieurs tailles de fût et de réseau dans le cas 1 sont donnés dans le tableau ci-dessous. Ces résultats sont comparés aux $K_{eff} + 3\sigma$ obtenus avec des sphères homogènes de rapport de modération moyen équivalent (H/U=600 comme pour les deux cas précédents).

Volume des fûts en litres	Réseau	Epaisseur de la couronne d'eau en cm	$K_{eff} + 3\sigma$ Rapport de modération variable suivant le rayon (H/U de 800 au centre à 400 en périphérie)	$K_{eff} + 3\sigma$ Rapport de modération moyen équivalent (H/U=600)
50	2*2*2	1	0,935	0,905
100	3*3*3	0	0,923	0,887
150	4*4*4	0,5	0,935	0,899
150	5*5*5	0	0,978	0,948
200	6*6*6	0	0,977	0,947

Tableau 5 - Comparaison de sphères à H/U variable et moyen

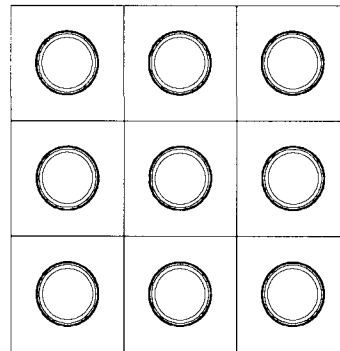
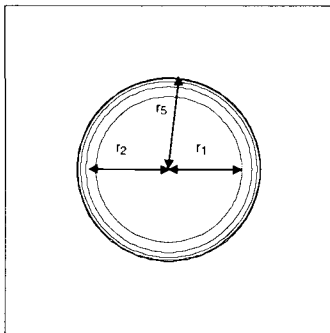
La configuration à sphères de concentration croissante suivant le rayon est plus réactive que la configuration à sphères de concentration homogène équivalente (on observe plusieurs milliers de pcm d'écart entre les deux configurations, quelles que soient les dimensions du réseau et la taille des fûts).

2.3.4 Effets de la distribution de la masse et de la concentration dans la sphère fissile

On retient la distribution de la concentration la plus pénalisante des deux cas précédents bien qu'elle ne soit pas réaliste (concentration croissante suivant le rayon), et on distribue également la masse arbitrairement dans les cinq régions de façon croissante et décroissante¹². Cette partie de l'étude s'appuie donc sur des données arbitraires et théoriques et ne cherche qu'à montrer (comme au chapitre 2.3.3) que des configurations de distribution non homogène de la matière fissile peuvent donner des cas plus réactifs qu'une distribution homogène.

Le calcul est réalisé pour des fûts de 100 litres en réseau cubique au pas carré 3*3*3 et la distribution de la masse et du H/U est fonction de deux configurations d'étude :

Cas 1 - Sphère à masse décroissante suivant le rayon :

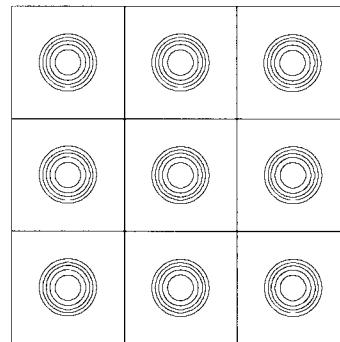
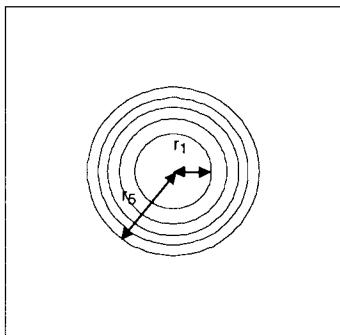


Répartition de la matière fissile dans les cinq régions de la sphère :

$0 < x < r_1$	150 g d' ²³⁵ U	H/U = 800	$r_1 = 10,32$ cm
$r_1 < x < r_2$	80 g d' ²³⁵ U	H/U = 700	$r_2 = 11,73$ cm
$r_2 < x < r_3$	60 g d' ²³⁵ U	H/U = 600	$r_3 = 12,48$ cm
$r_3 < x < r_4$	40 g d' ²³⁵ U	H/U = 500	$r_4 = 12,86$ cm
$r_4 < x < r_5$	20 g d' ²³⁵ U	H/U = 400	$r_5 = 13,01$ cm

NB : La masse totale d' d'²³⁵U est de 350g.

Cas 2 - Sphère à masse croissante suivant le rayon :



¹² Des études ont été menées sur une distribution optimale de la matière fissile dans différents milieux fissiles, amenant à des masses critiques plus faibles que pour des milieux homogènes. Dans une de ces études [5], la sphère est divisée en 5 régions fissiles ayant le même rapport surface sur volume, et dans lesquelles la concentration relative moyenne a été calculée en intégrant une courbe de distribution de concentration. Une étude basée sur ces critères (mais sur des réseaux de fûts) sera effectuée dans la suite de ce stage.



Répartition de la matière fissile dans les cinq régions de la sphère :

$0 < x < r_1$	20 g d' ^{235}U	H/U = 800	$r_1 = 5,27 \text{ cm}$
$r_1 < x < r_2$	40 g d' ^{235}U	H/U = 700	$r_2 = 7,39 \text{ cm}$
$r_2 < x < r_3$	60 g d' ^{235}U	H/U = 600	$r_3 = 9,02 \text{ cm}$
$r_3 < x < r_4$	80 g d' ^{235}U	H/U = 500	$r_4 = 10,32 \text{ cm}$
$r_4 < x < r_5$	150 g d' ^{235}U	H/U = 400	$r_5 = 11,82 \text{ cm}$

NB : La masse totale d' ^{235}U est de 350g.

Résultats

Volume des fûts en litres	Réseau	Epaisseur de la couronne d'eau en cm	Cas 1 : $K_{eff} + 3\sigma$ Distribution décroissante de la masse	$K_{eff} + 3\sigma$ Rapport de modération moyen équivalent (H/U=685) et masse homogène de 350 g d' ^{235}U (rayon de la sphère : 13 cm)
100	3*3*3	0	1.002	0.892

Volume des fûts en litres	Réseau	Epaisseur de la couronne d'eau en cm	Cas 2 : $K_{eff} + 3\sigma$ Distribution croissante de la masse	$K_{eff} + 3\sigma$ Rapport de modération moyen équivalent (H/U=514) et masse homogène de 350 g d' ^{235}U (rayon de la sphère : 11,82 cm)
100	3*3*3	0	0.836	0.873

Tableau 6 - Comparaison de sphères à H/U et masse distribués suivant le rayon

La distribution décroissante de la masse d'uranium 235 donne la configuration la plus réactive (et même surcritique : cas 1).

Les gradients de concentration et de masse retenus arbitrairement dans cette étude représentent une description assez pessimiste (et peu réaliste pour ce qui est de la distribution des concentrations). Cependant des distributions optimales montrent des cas encore plus réactifs (Cf. études d'hétérogénéité continue [6 et 7]). Ainsi, avec les hypothèses de distribution de Goertzel¹³, on peut obtenir une réduction maximale possible de la masse minimale critique de 30% sur des sphères d'uranium métal modérées à l'eau [6]. L'application de ces hypothèses sur des cas de réseaux fera l'objet d'une étude dans la suite de ce stage.

Il faut toutefois relativiser ces résultats par le fait que la prise en compte de parois en acier des fûts, de quelques millimètres d'épaisseur, diminue considérablement la réactivité (effet poison) des configurations étudiées, comme cela a été montré dans l'étude [8] sur des fûts contenant du plutonium.

¹³Cette modification de gradient de concentration de la matière fissile suit approximativement le gradient du flux de neutrons thermique dans le milieu et aboutit à l'approximation du flux plat.



2.3.5 Présence d'éthylène CH₂ dans les fûts

L'introduction d'eau est un facteur de risque important dans la plupart des installations d'entreposage de matières fissiles (par inondations par exemple). En effet, le fait de modérer un milieu fissile diminue la masse minimale critique de ce milieu. L'eau retenue dans la plupart des études comme élément modérateur ou réflecteur ne représente pourtant pas un paramètre enveloppe dans toutes les situations.

Ainsi, l'eau n'est pas l'élément modérateur le plus pénalisant. La modélisation pour le polyéthylène de composition (CH₂)_n, d'un milieu fissile contenant du Pu²³⁹, donne une masse minimale critique de 0,370 g au lieu de 0,530 g pour une modération par de l'eau¹⁴.

Les fûts de déchets pouvant contenir des matériaux en polyéthylène, trois types de modélisations ont été effectuées sur la base des hypothèses du chapitre 2.1 :

- remplacement de l'eau des sphères fissiles par du CH₂,
- remplacement de l'eau des couronnes par du CH₂,
- remplacement de l'eau des sphères et des couronnes par du CH₂.

Calculs préliminaires des concentrations atomiques du milieu fissile ²³⁵U métal-CH₂:

Afin d'étudier un milieu modéré par du CH₂, il faut calculer les données nécessaires au code MELODIE (il n'y a pas dans MELODIE de loi de dilution de l'uranium métal dans le CH₂).

Le code MELODIE permet de calculer les concentrations atomiques suivantes :

- pour un milieu ²³⁵U seul, C(²³⁵U) = 4,768590.10²² atomes/cm³.
- pour un milieu CH₂ seul, C(CH₂) = 4,12859.10²² molécules/cm³.

L'expression des volumes molaires est :

$$V_m(^{235}\text{U}) = \frac{\eta}{C(^{235}\text{U})} \quad \text{et} \quad V_m(\text{CH}_2) = \frac{\eta}{C(\text{CH}_2)} \quad \text{avec } \eta_{(\text{nombre d'Avogadro})} = 6,02 \cdot 10^{23} \text{ at / mol}$$

$$V_m(^{235}\text{U}) = 12,63 \text{ cm}^3 / \text{mol} \quad \text{et} \quad V_m(\text{CH}_2) = 14,61 \text{ cm}^3 / \text{mol}$$

On applique la loi de dilution d'un soluté qui donne la concentration de l'uranium 235 dans le milieu fissile homogène CH₂-²³⁵U, en g/cm³, pour H/U=800 :

$$C = \frac{M_{^{235}\text{U}}}{V_m(^{235}\text{U}) + \left(\frac{H}{U}\right) \left(\frac{V_m(\text{CH}_2)}{2}\right)} \quad \text{avec } M_{^{235}\text{U}} : \text{masse molaire de l'uranium 235}$$

$$C = 4,01 \cdot 10^{-2} \text{ g / cm}^3$$

¹⁴ Cf. ANS Transactions, Vol. 27, pp. 419-420



Le nombre d'atomes d'uranium 235 et de CH₂ par cm³ dans le milieu fissile homogène est alors :

$$N_{235U} = \frac{C \cdot \eta}{M_{235U}}$$

$$N_{CH_2} = \frac{H}{U} \left(\frac{N_{235U}}{2} \right)$$

$$N_{235U} = 1,02815 \cdot 10^{20} \text{ at / cm}^3$$

$$N_{CH_2} = 4,11260 \cdot 10^{22} \text{ at / cm}^3 \quad \text{pour} \quad \frac{H}{U} = 800$$

Ces concentrations atomiques sont entrées dans MELODIE pour la constitution du milieu fissile uranium métal (100%²³⁵U) - CH₂.

Résultats des calculs

Le tableau ci-après donne les résultats pour les différentes configurations contenant du CH₂ comparés aux résultats d'un milieu modéré à l'eau et entouré d'une couronne d'eau.

Dans tous les cas, les milieux fissiles sont des milieux homogènes, la masse d'uranium 235 est de 350 g par fût et le rapport de modération H/U=800.

Milieux et couronnes		Umétal (100% ²³⁵ U) - H ₂ O Couronne H ₂ O				Umétal (100% ²³⁵ U) - CH ₂ Couronne H ₂ O				Umétal (100% ²³⁵ U) - CH ₂ Couronne CH ₂				Umétal (100% ²³⁵ U) - H ₂ O Couronne CH ₂			
fûts en litres	épaisseur de couronne en cm	Nombre de fûts en réseau															
		8	27	64	125	8	27	64	125	8	27	64	125	8	27	64	125
		2*2*2	3*3*3	4*4*4	5*5*5	2*2*2	3*3*3	4*4*4	5*5*5	2*2*2	3*3*3	4*4*4	5*5*5	2*2*2	3*3*3	4*4*4	5*5*5
50	0	0,901	1,002			0,944				0,944				0,901			
	0,5	0,901				0,948				0,940				0,889			
	1	0,907				0,953				0,936				0,879			
	2	0,896				0,948				0,917				0,850			
	4													0,819			
	5					0,919					0,879						
100	0		0,896	0,957			0,945				0,944				0,896		
	0,5		0,898	0,958			0,947				0,945				0,887		
	1		0,898	0,953			0,948				0,933				0,877		
	2		0,894	0,936			0,942				0,914				0,849		
	5		0,856	0,869			0,918				0,878				0,806		
	150	0			0,894	0,952			0,950				0,950				0,903
0,5				0,895	0,946			0,955				0,940				0,892	
1				0,887	0,947			0,954				0,937				0,883	
2				0,879	0,924			0,948				0,917				0,856	
5				0,834	0,868			0,920				0,881				0,810	
200		0				0,907				0,955				0,955			
	0,5				0,908				0,958				0,951				0,898
	1				0,912				0,958				0,941				0,889
	2				0,900				0,950				0,921				0,860
	5				0,863				0,922				0,879				0,808

Tableau 8 - Tableau comparatif des résultats pour des milieux contenant du CH₂



Les valeurs obtenues à l'optimum d'épaisseur de couronne (valeurs repérées dans le tableau précédent et graphe ci-dessous) montrent que le milieu le plus réactif est un milieu uranium métal modéré par du polyéthylène.

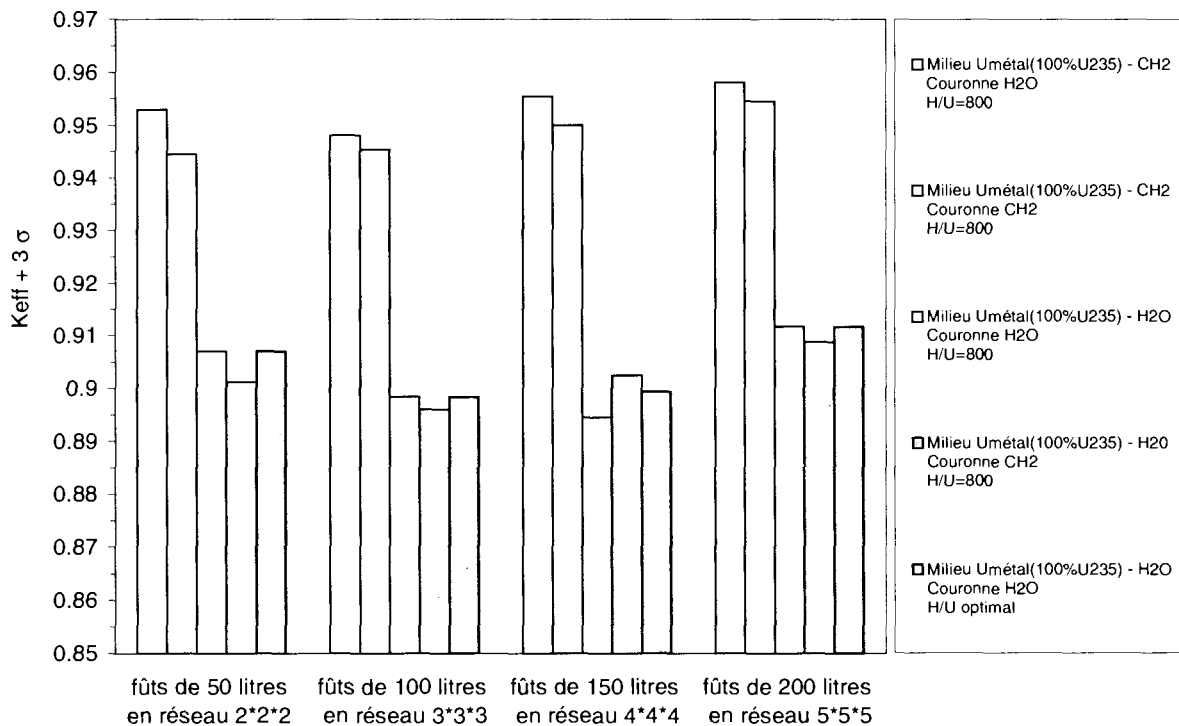
Pour ce milieu, les valeurs de $K_{eff} + 3\sigma$ obtenues sont supérieures de plus de 4000 pcm dans les 4 cas de réseaux étudiés aux valeurs d'un milieu uranium métal modéré par de l'eau et réfléchi par une couronne d'eau.

Dans le milieu fissile, un des effet de la densité est que, pour un rapport de modération donné, le composé qui présente la concentration en uranium 235 la plus élevée conduit à la réactivité la plus importante. C'est le cas pour un composé CH_2 - ^{235}U par rapport à un composé H_2O - ^{235}U .

Le CH_2 a, de plus, un effet modérateur supérieur à l'eau. Il diffuse mieux les neutrons et les capture moins que l'eau (le carbone est peu capturant et a une section efficace de diffusion plus importante que l'oxygène).

La différence de K_{eff} obtenue dans les mêmes conditions avec une couronne de polyéthylène ou une couronne d'eau n'est pas significative (inférieure à $3\sigma = 600$ pcm).

Il faut une épaisseur moindre de CH_2 , en couronne, par rapport à l'eau pour obtenir que la réflexion prédomine sur le phénomène de modération externe (le polyéthylène agit alors en isolant la sphère et en amenant la réactivité du réseau à la réactivité propre d'une maille).



Graphe 7 - Valeurs du $K_{eff} + 3\sigma$ pour différents milieux et couronnes



2.4 COMPARAISON DE VALEURS DE KEFF OBTENUES PAR LA PROCEDURE CRISTAL

Le but de cette étude est de comparer les résultats obtenus par les deux procédures sur une même modélisation de réseau et d'identifier certains paramètres à l'origine des écarts.

2.4.1 Modification des jeux de données par rapport à la procédure APOMOR

Modélisation chimique des milieux

MORET 4 pouvant travailler avec un découpage en 172 groupes d'énergie, les bibliothèques de sections efficaces à 16 groupes disponibles dans MORET 3 ne sont donc plus utilisées, et un calcul des sections efficaces de chaque milieu doit être effectué.

Les milieux de structures doivent donc être décrits dans le code CIGALES ce qui n'est pas le cas pour l'utilisation de MORET 3¹⁵.

Dans le cas de cette étude, les milieux créés dans CIGALES sont :

- le milieu fissile (²³⁵U métal dans l'eau, pour 2 rapports de modération différents : H/U=500 et 800),
- les milieux de structures : air, eau, béton.

La loi de dilution de l'uranium métal dans l'eau utilisée par CIGALES étant différente de celle utilisée par MELODIE, les résultats des calculs de concentration atomiques obtenus par CIGALES donnent des valeurs supérieures à celles obtenues par MELODIE (Cf. tableau ci-après).

H/U	Concentrations atomiques en 10 ²⁴ atomes/cm ³			
	MELODIE		CIGALES	
	uranium 235	H ₂ O	uranium 235	H ₂ O
500	1,33338.10 ⁻⁰⁴	3,33344.10 ⁻⁰²	1,33344.10 ⁻⁰⁴	3,33359.10 ⁻⁰²
800	8,34235.10 ⁻⁰⁵	3,33694.10 ⁻⁰²	8,34259.10 ⁻⁰⁵	3,33703.10 ⁻⁰²

Tableau 9 - Différences de concentrations atomiques dans CIGALES et MELODIE

¹⁵ MORET 3 dispose de données chimiques à découpage en 16 groupes énergétiques (Hansen & Roach) et notamment une bibliothèque interne de sections efficaces macroscopiques. ¹⁵ Les tables d'albédo à 16 groupes d'énergie de MORET 3 ne sont également plus utilisables dans le découpage énergétique de MORET 4. Rappelons que les tables d'albédo simulent des réflexions différentielles en angle et en énergie dues à une paroi (plomb, béton, eau).



Cette faible différence de concentrations atomiques fait varier les résultats de quelques centaines de pcm (ce qui est peu significatif).

Pour cette étude, les concentrations atomiques calculées par CIGALES ont été remplacées par celles obtenues par MELODIE dans le fichier APOLLO.

Modélisation géométrique des milieux

La syntaxe du jeu de données MORET 4 est différente et doit être modifiée par rapport au fichier de données MORET 3.

L'utilisation des options de l'albédo n'est pas compatible avec le maillage 172 groupes employé dans CRISTAL¹⁶.

Cela impose d'isoler le réseau de fût par une épaisseur de béton, c'est-à-dire de décrire sa géométrie dans MORET 4 (60 cm d'épaisseur pour une réflexion infinie correspondant à celle appliquée dans MORET 3 grâce aux tables d'albédo).

Les tables d'albédo sont rigoureuses si le système considéré est identique au système de base qui a permis de les calculer ; dans les autres cas elles majorent les K_{eff} d'autant plus que l'épaisseur de réflecteur est plus faible et la surface plus petite.

Les dimensions minimales des surfaces planes en réflexion doivent être de 130x130 cm.

Pour de petits volumes de fûts, en réseaux de taille réduite, (exemple : fût de 20 litres en réseau 2*2*2) on observe donc une majoration du $K_{\text{eff}} + 3\sigma$ calculé dans MORET 3, car les dimensions minimales des surfaces planes en réflexion sont inférieures à 130x130 cm.

Les valeurs obtenues confèrent un caractère enveloppe à l'étude.

2.4.2 Résultats

La première série de valeurs (cas (1) dans le tableau suivant) correspond à un calcul utilisant l'enchaînement APOLLO 1 et MORET 3 dans les conditions définies au chapitre 2.1.

Le cas (2) correspond à un calcul utilisant l'enchaînement APOLLO 1 et MORET 3 mais tenant compte :

- de la correction des concentrations atomiques par un calcul CIGALES,

¹⁶ Les tables d'albedo de MORET 3 ont été établies à l'aide du code ANISN et des tables de sections efficaces décrites dans le maillage à 16 groupes d'énergie Hansen et Roach, pour l'eau et le béton. Les tables d'albedo ne sont donc compatibles qu'avec une bibliothèque de sections efficaces établies sur le même découpage énergétique.



- du remplacement dans le fichier MORET 3 des données d'albédo par une épaisseur équivalente de 60 cm de béton autour du réseau (épaisseur qui sature la réflexion).

Enfin les données CRISTAL, cas (3), proviennent de l'enchaînement d'un calcul CIGALES, APOLLO 2, MORET 4 avec l'utilisation d'une épaisseur de 60 cm de béton pour la réflexion du réseau.

H/U	Volume des fûts en litres	Réseau	Épaisseur de couronne d'eau en cm	$K_{eff} + 3\sigma$ APOMOR Cas (1)	$K_{eff} + 3\sigma$ APOMOR Cas (2)	$K_{eff} + 3\sigma$ CRISTAL Cas (3)	Ecart en Pcm (2)-(3)
800	50	2*2*2	0	0,901	0,871	0,880	-842
800	100	3*3*3	0,5	0,898	0,888	0,885	333
500	100	4*4*4	1	0,949	0,936	0,926	982

Tableau 10 – Comparaisons des résultats de deux schémas de calcul

On notera que l'écart entre les $K_{eff} + 3\sigma$ des cas (1) et (2) est le plus important pour une petite taille de fût et de réseau (modification des données de réflexion par le béton).

Les résultats des deux schémas de calcul (APOLLO 1 - MORET3 et APOLLO 2 - MORET 4), obtenus avec les mêmes données d'entrée (cas 2 et 3), présente également un écart de quelques centaines de pcm.

Cet écart est lié à la différence de découpage énergétique des bibliothèques de sections efficaces (16 et 172 groupes), ainsi qu'à la description du milieu eau qui a été modifiée dans MORET 4 (sections efficaces, anisotropie).

3 CONCLUSION

L'idée première de cette étude a été de définir des conditions d'entreposages pour des déchets pauvres (que l'on rencontre en grande quantité dans les installations) renfermant 350 g d'uranium 235 par fût¹⁷.

Le nombre maximal admissible de fûts en fonction du volume des fûts, à stocker en réseau au pas carré et en empilement quelconque, a donc été déterminé pour une réflexion assurée par du béton.

Cette étude est valable pour des fûts cylindriques dans la limite d'un rapport hauteur sur diamètre au plus égal à 3 [3], pour une réflexion de l'empilement par du béton, et quelles que soient les hypothèses de modération, de couplage entre fûts et quelle que soit la densité de matière fissile (dans le cas d'un milieu fissile uranium métal dans l'eau).

Elle présente donc un caractère enveloppe de beaucoup de configurations d'entreposage réels.

La présence de matériaux comme le polyéthylène dans les fûts représente un facteur pénalisant qui peut faire l'objet d'une étude plus importante. Un milieu uranium 235 métal modéré par du polyéthylène donne des coefficients de multiplication effectifs supérieurs de plus de 4000 pcm à ceux obtenus pour un milieu uranium 235 métal modéré par de l'eau. Du fait même des chargement des fûts contenant en moyenne une grande quantité de polyéthylène, il serait nécessaire d'étudier le nombre de fût maximal admissible en fonction du volume des fûts, pour un milieu uranium métal / polyéthylène.

On notera aussi qu'une répartition optimale de la matière fissile de la sphère (pour un rayon optimal) entraîne également une augmentation de réactivité par rapport à une sphère de répartition homogène.

Les parois en acier des fûts, non prises en compte dans l'étude dans un but pénalisant, diminuent la réactivité dans un empilement. Une étude prenant en compte une épaisseur de paroi d'acier de quelques millimètres sera effectuée dans la suite de ce stage afin de chiffrer la baisse de réactivité entraînée.

Cette étude sera également complétée par différents calculs dont la modélisation d'un entreposage au pas triangulaire.

¹⁷ On notera dans la bibliographie [9 à 13] que la majorité des études sont basées sur le plutonium 239. Les paramètres critiques de ces études sont enveloppes des études basées sur l'uranium 235.



4 BIBLIOGRAPHIE

- [1] Note CEA-N-1291 (juin 1970) : Normes de stockage de matières fissiles (U enrichi, Pu, modérés ou non).
- [2] DI n° 85/30 du 20/11/85 : Réactualisation partielle des normes de stockage (note CEA/N-1291) en ce qui concerne les déchets pauvres plutonifères solides à raison de 350 g par fût maximum.
- [3] SEC/T/n° 69/53 du 28/03/69 : Stockage de déchets solides renfermant du plutonium ou de l'uranium dans des fûts de 100 et 200 litres.
- [4] SEC/T n° 87/21 du 03/06/87 : La Hague UP3 UP2800 Ateliers T7 R7 – Stockage de bloc de verres renfermant 100 g de Pu 239 (Nombre admissible maximal de fûts contenant 100 g de Pu et dont le volume unitaire est variable de 20 à 50 litres).
- [5] Clefs pour la neutronique des réacteurs à eau, pp 100-107 : Optimisation de la répartition de la matière fissile (P.REUSS)
- [6] ANS Transactions, Vol.08, pp. 200-201 : Effect of distribution of fissile material on critical mass (H.K.CLARK).
- [7] Etude documentaire et appliquée à l'hétérogénéité continue (J.ANNO).
- [8] SEC/T/0900/93.232 : Etude du stockage de fûts de déchets de graphite contaminés par du plutonium (J.ANNO).
- [9] SEC/T/n° 96.63 du 15/02/96 : MELOX – Entreposage de fûts de déchets de "118 litres": Masse maximale admissible de Pu contenue dans un fût de déchet de "118 litres", pour un entreposage sur au plus 3 niveaux.
- [10] SEC/T/n° 96.104 du 28/03/96 : MELOX – Entreposage de fûts de déchets (renfermant du Pu) de "118 litres" avec prise en compte de la géométrie réelle de l'entreposage.
- [11] Note criticité 94-04 COGEMA Marcoule du 28/03/94 : Entreposage de fûts de déchets contenant du Pu.
- [12] SEC/T/n° 82.386 du 05/11/82 : Marcoule UP1 salle 90 - Stockage de fûts de déchets : Nombre admissible de fûts de 100 litres renfermant 50g de Pu 239. Nombre admissible de fûts de 100 litres renfermant 250 g de Pu 239.
- [13] SEC/T/n° 79/5 du 12/01/79 : Installation de stockage de décroissance de déchets radioactifs : Valeur de masses de matières fissiles, admissibles sur le plan de la criticité, pour le stockage de poubelles (cellule unitaire de 117.5 litres, 60 g de Pu 239), et de fûts de 200 litres (déchets solides, 250 g de Pu 239).