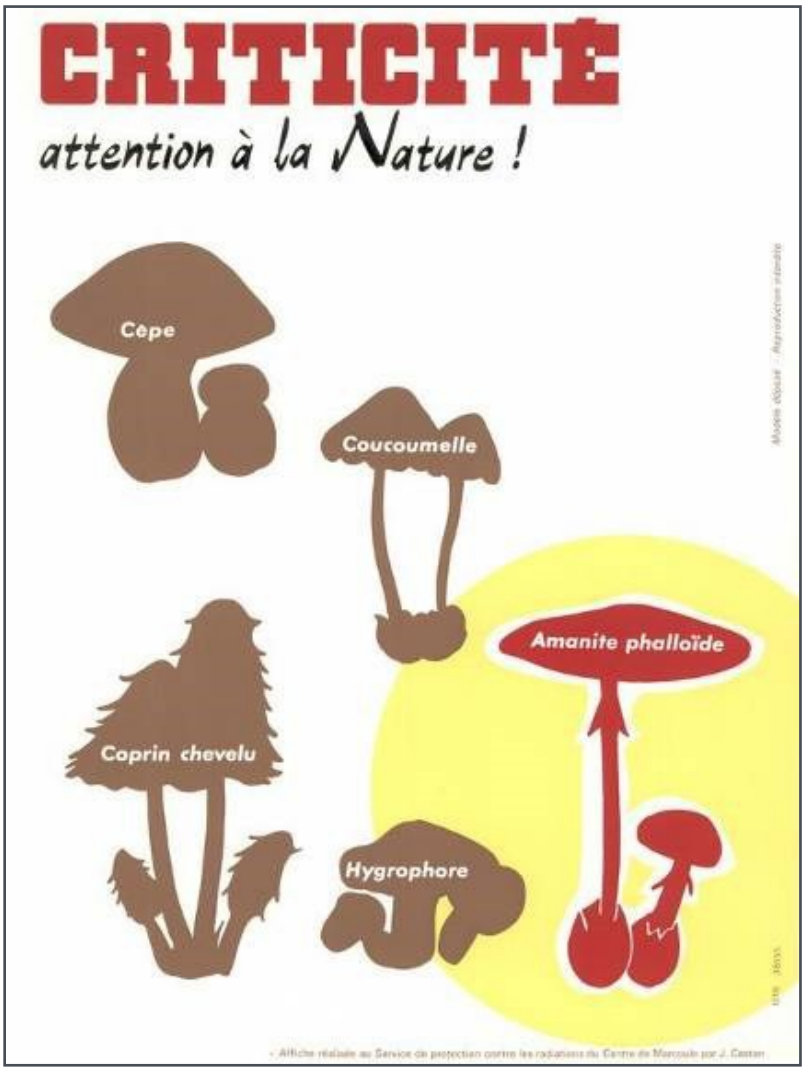
# FICHE N°4

## MILIEU FISSILE DE RÉFÉRENCE




*Ce document, élaboré pour la réalisation d'études de sûreté-criticité, est la propriété du CEA. Il ne se substitue en aucun cas à une analyse de sûreté-criticité ou à l'avis d'un ingénieur criticien et ne peut pas servir de référence directe.*

## Définitions et réglementation

⇨ Le milieu fissile de référence est le **milieu fissile pris comme hypothèse dans les études et les calculs de criticité**. Sa définition est une étape importante de l'analyse de sûreté-criticité. La notion de milieu fissile de référence est définie dans la **RFS I.3.c** et reprise dans la **décision ASN 2014-DC-0462**, dite « décision criticité », applicable aux INB.

⇨ Le milieu fissile de référence est le **« *milieu fissile enveloppe en termes de réactivité de ceux susceptibles d'être présents dans l'installation et conduisant, suite à l'étude des configurations normales et anormales, aux limites associées aux paramètres de criticité les plus pénalisants compte tenu du mode de contrôle retenu* »**.

⇨ Le milieu fissile de référence (MFR) est défini par :

1) **Une matière fissile** : sa composition, sa forme physico-chimique et sa répartition (homogène/hétérogène) ;
2) **Une matière modératrice** : sa composition et sa répartition (homogène/hétérogène) ;
3) **Une loi de dilution** (voir fiche n°5).

| | Données caractéristiques d'un milieu fissile de référence |
|---|---|
| **1) Matière fissile mise en œuvre**<br>*« Matière constituée d'éléments chimiques dont certains isotopes sont fissiles »* | **Composition** :<br>• Inventaire des matières fissiles (actinides : en général U et/ou Pu, voire des actinides mineurs) et non fissiles<br>• Proportion de chaque élément : généralement caractérisée par la teneur massique en Pu : Pu/(U+Pu)<br>• Composition isotopique (également appelé vecteur isotopique ou spectre isotopique) : en général, il s'agit des proportions massiques de chaque isotope :<br>∗ Uranium : enrichissement = proportion massique d'$^{235}$U dans l'uranium ($^{235}U/U_{total}$)<br>∗ Plutonium : composition isotopique massique (« vecteur Pu »), classiquement : $^{239}$Pu/$^{240}$Pu/$^{241}$Pu/$^{242}$Pu<br>• Prise en compte éventuelle de l'irradiation :<br>∗ Matière considérée comme non-irradiée (cas pénalisant hors couvertures fertiles RNR, voir ci-après)<br>∗ Prise en compte d'une irradiation minimale garantie : « Crédit Burn-Up » (actinides ou actinides + PF) |
| | **Forme physico-chimique** :<br>• Forme chimique : métal, oxyde, nitrate, nitrure, carbure, oxyfluorure…<br>+ composition chimique associée (ex. avec le Pu : Pu, $PuO_2$, $Pu(NO_3)_4$, PuN, PuC, $PuO_2F_2$)<br>• Forme physique : solide, liquide, gazeux, cristal, fritté, poudre, précipité, solution aqueuse ou organique, sous forme de pastilles ou d'assemblages constitués…<br>+ paramètres associés (densité de la forme cristalline, densité de la poudre, masse volumique…) |
| | **Répartition de la matière fissile** :<br>• Soit homogène (solutions, poudres…)<br>• Soit hétérogène (crayons, plaques, assemblages constitués…) |
| **2) Matière modératrice**<br>*« Matière constituée d'éléments chimiques modérateurs »* | **Composition** :<br>En règle générale, c'est l'eau ($H_2O$). Le rapport de modération est alors noté :<br>• En modération homogène : H/X, H/U, H/$^{235}$U, H/Pu, H/(U+Pu)… (rapport des nombres d'atomes de matière modératrice et de matière fissile)<br>• En modération hétérogène : $V_{mod.}/V_{fiss.}$ (rapport des volumes de matière modératrice et de matière fissile)<br>Pour un milieu acide, la molarité en acide (« acidité ») peut éventuellement être prise en compte.<br>Autres modérateurs possibles : $CH_2$, C, F, Be, Na, eau lourde, araldite, poudre extinctrice d'incendie...<br>Ces matériaux peuvent être plus ou moins modérateurs que l'eau selon les configurations. |
| | **Répartition de la matière modératrice** (voir fiche n°12) :<br>Homogène ou hétérogène |
| **3) Loi de dilution** | La loi de dilution doit être choisie pour conduire aux limites les plus faibles, compte tenu du mode de contrôle retenu. Les principales lois de dilution sont :<br>• Loi « métal »<br>• Loi « cristal » (utilisée pour les oxydes d'U, de Pu et d'(U+Pu) à la densité maximale théorique)<br>• Loi « poudre » (utilisée pour les oxydes d'U, de Pu et d'(U+Pu) à densité réduite)<br>• Loi « sels standard » (utilisée comme enveloppe de tous précipités uranifères et plutonifères)<br>• Loi « nitrate » (utilisée pour les solutions nitriques) |

*Ce document, élaboré pour la réalisation d'études de sûreté-criticité, est la propriété du CEA. Il ne se substitue en aucun cas à une analyse de sûreté-criticité ou à l'avis d'un ingénieur criticien et ne peut pas servir de référence directe.*

## Détermination du milieu fissile de référence

⇨ La méthode généralement appliquée pour déterminer le milieu fissile de référence consiste à :

- Au préalable, **définir les modes de contrôle** associés aux différentes unités concernées de l'installation, sur la base de l'étude des configurations normales et anormales (voir fiche n°3) ;
- **Établir un inventaire exhaustif des matières fissiles** susceptibles d'être mis en œuvre dans les différentes unités de l'installation, quelles que soient leur forme physico-chimique et leur composition isotopique (voir partie **1)** du tableau précédent) ;
- **Établir une liste exhaustive des autres matières présentes avec / à proximité de la matière fissile**, susceptibles de se mélanger avec elle. En effet, certaines matières peuvent modérer la matière fissile (graphite, eau, plastique…) (voir partie **2)** du tableau précédent) ;
- Par combinaison des matières fissiles et des matières modératrices mises en œuvre **et compte tenu du mode de contrôle retenu**, **définir un milieu fissile suffisamment enveloppe vis-à-vis du risque de criticité**, pour couvrir l'ensemble des configurations normales et anormales mises en évidence dans les analyses de sûreté-criticité. Ce milieu doit être défini de sorte que dispositions de sûreté retenues à la conception puissent être maintenues lors de l'évolution des activités de l'installation, autant que faire se peut.

Nota : Le milieu fissile de référence pris en considération pour un équipement en cours d'exploitation peut être défini de manière volontairement pénalisante. Par exemple, il peut couvrir les opérations d'assainissement futures (présence de précipités), lorsque les conditions d'exploitation avec ce milieu fissile de référence plus pénalisant ne sont pas trop contraignantes.

Nota : Il est possible de retenir, pour certaines configurations anormales, un milieu fissile de référence différent de celui considéré en configuration normale.

Exemple pour une solution de nitrate de plutonium (sujette à risque de précipitation en fonction de l'acidité du milieu) :

- Configuration normale : $Pu(NO_3)_4$ ;
- Configuration anormale : $PuO_2F_2$ (forme enveloppe de tout type de précipité plutonifère).

### *Influence de la composition isotopique sur la détermination du milieu fissile de référence*

⇨ Cas de l'uranium : il est généralement plus pénalisant de considérer un enrichissement maximal en $^{235}U$.

*Exceptions :*
- *cas de l'$^{233}U$ (présent, en particulier, dans les combustibles thorium) : cet isotope peut conduire à des limites plus restrictives que l'$^{235}U$;*
- *cas des combustibles URE (à base d'Uranium de Retraitement Enrichi, contenant notamment les isotopes $^{234}U$ et $^{236}U$) au-delà d'une certaine combustion massique.*

⇨ Cas des milieux mixtes : deux cas existent :

- Uranium support peu enrichi (uranium naturel ou appauvri) : il est toujours pénalisant de considérer une teneur maximale en Pu (Pu/U ou Pu/(U+Pu)) ;
- Uranium support enrichi : à traiter au cas par cas : Il est conseillé de faire varier le ratio Pu/(U+Pu) ainsi que l'enrichissement en $^{235}U$ dans la plage des teneurs possibles.

⇨ Cas du plutonium : le milieu le plus réactif est le plutonium pur en isotope 239. Si l'on souhaite décontraindre cette isotopie, les isotopes impairs étant fissiles et les isotopes pairs absorbants, il est pénalisant de majorer les proportions des isotopes impairs (239 et 241) et de minorer celles des isotopes pairs (238, 240 et 242).

*Exception : en réalité, l'isotope le plus pénalisant est le 241 mais il n'est, sauf exception (séparation d'isotopes…), jamais rencontré isolément.*

Pour des milieux plutonifères d'isotopies diverses, une méthodologie possible pour définir une composition isotopique massique enveloppe du plutonium est la suivante :

- Sélection de la teneur massique en $^{240}Pu$ (notée $r_0$) **minimale** ;
- Sélection du ratio $^{241}Pu/^{240}Pu$ (noté $r_1$) **maximal** ;
- Sélection du ratio $^{242}Pu/^{241}Pu$ (noté $r_2$) **minimal** ;
- Définition du vecteur enveloppe par :

$$(^{239}Pu / ^{240}Pu / ^{241}Pu / ^{242}Pu) = (X / r_0 / r_1 \times r_0 / r_2 \times r_1 \times r_0).$$

où X (teneur en $^{239}Pu$) est le complément à 100 % des autres isotopes du Pu.

*Ce document, élaboré pour la réalisation d'études de sûreté-criticité, est la propriété du CEA. Il ne se substitue en aucun cas à une analyse de sûreté-criticité ou à l'avis d'un ingénieur criticien et ne peut pas servir de référence directe.*

Nota : Certains calculs de criticité « anciens » prennent en compte une composition isotopique définie par des proportions massiques des isotopes 239 et 240 du plutonium respectivement de 83 % et 17 %. Cette composition ne tient pas compte de la présence de l'isotope 241 du plutonium, plus réactif que l'isotope 239. Il ne peut donc pas être considéré comme enveloppe de la composition isotopique du plutonium extrait de combustibles irradiés en réacteur de type « REP » de teneur en isotope 240 supérieure ou égale à 17 %.

Il est montré que la composition isotopique massique enveloppe du plutonium issu de l'irradiation de combustibles de type « REP », contenant au minimum 17 % d'isotope 240 du plutonium, est : **($^{239}$Pu / $^{240}$Pu / $^{241}$Pu / $^{242}$Pu) = (71 % / 17 % / 11 % / 1 %).**

## *Remarques sur les combustibles irradiés*

⇨ La composition d'un combustible irradié en **réacteur à eau légère** (UOX ou MOX irradié en réacteur REP ou REB) est couverte, vis-à-vis du risque de criticité, par la composition du **combustible avant irradiation**, hors exception (*).

*(*) Exception : combustibles contenant un poison consommable (ex : assemblages REB avec crayons Gd : pic de réactivité pour les faibles combustions massiques).*

⇨ Le « **Crédit Burn-Up** », ou « prise en compte de la combustion massique », permet de diminuer la réactivité d'un milieu fissile, compte tenu des changements qui interviennent dans sa composition pendant l'irradiation : en particulier, la « combustion » des noyaux fissiles et la formation d'actinides et de produits de fission (PF), quelques-uns étant très absorbants.

On distingue plusieurs types de « Crédit Burn-Up » :

- Crédit Burn-Up « actinides » : prise en compte de l'évolution de la composition de certains actinides
  *Exemple : dimensionnement des piscines d'entreposage d'assemblages combustibles de La Hague*
- Crédit Burn-Up « actinides + PF » : prise en compte d'un nombre variable de PF neutrophages
  *Exemple : dimensionnement d'un emballage de transport*

Nota : 6 PF sont responsables de plus de la moitié de l'absorption des PF (sans prise en compte des PF gazeux et volatils Xe, I, Br, Kr) :

- PF stables : $^{103}$Rh, $^{133}$Cs, $^{143}$Nd, $^{149}$Sm, $^{152}$Sm ;
- $^{155}$Eu qui engendre $^{155}$Gd.

Des études et des programmes expérimentaux sont nécessaires pour prendre en compte cette anti-réactivité dans les calculs de sûreté-criticité. On peut citer à titre d'exemple les programmes réalisés dans MINERVE et EOLE.





⇨ Pour les couvertures fertiles des **réacteurs à neutrons rapides**, les teneurs en matières fissiles sont, au contraire, d'autant plus élevées que l'irradiation est importante (production de plutonium riche en $^{239}$Pu à partir des éléments de couverture en uranium naturel ou appauvri). Par conséquent, il convient, pour ces couvertures, de retenir la teneur en matières fissiles générée dans cette zone en prenant en considération la combustion massique maximale du cœur fissile. Cette valeur enveloppe doit tenir compte des incertitudes affectant les résultats fournis par l'exploitant du réacteur.

## *Remarques sur la répartition de la matière fissile (milieu homogène ou hétérogène)*

⇨ Le milieu fissile de référence doit prendre en compte la forme physique de la matière :

- Milieu dit « homogène » : solution, poudre...
- Milieu dit « hétérogène » : crayons, plaques, assemblages constitués…

⇨ La forme physique la plus pénalisante dépend de l'enrichissement et du paramètre critique pris en considération.

Exemple pour de l'uranium, en mode de contrôle par la **masse** :

- Enrichissement > 20 % : milieu homogène enveloppe
- Enrichissement < 20 % : milieu hétérogène enveloppe

(voir fiches n°7 et 8 pour plus d'informations)

*Ce document, élaboré pour la réalisation d'études de sûreté-criticité, est la propriété du CEA. Il ne se substitue en aucun cas à une analyse de sûreté-criticité ou à l'avis d'un ingénieur criticien et ne peut pas servir de référence directe.*

## *Remarques sur les matières modératrices*

⇨ D'une manière générale, tous les matériaux contenant des noyaux légers (en particulier, de l'hydrogène) peuvent être source potentielle de modération. Le modérateur le plus communément utilisé est l'**eau**. Cependant, certaines matières modératrices, comme le **polyéthylène ($CH_2$)** de densité maximale (0,96), peuvent être plus efficaces que l'eau, c'est-à-dire qu'elles peuvent conduire à des limites de criticité plus faibles pour un milieu fissile donné.

⇨ Le « pouvoir modérateur » des matières, en comparaison à celui de l'eau, dépend de leur **composition** (en particulier, de la teneur en noyaux légers tels que l'hydrogène) et de leur **densité**, mais également de la **matière fissile** et du **mode de contrôle retenu**. Par exemple, pour un milieu Pu métal pur en isotope 239 :

- La masse minimale critique de plutonium est plus faible en prenant en compte une modération par du $CH_2$ de densité 0,96 qu'avec de l'eau ;
- Il existe une densité de $CH_2$ en-deçà de laquelle la masse minimale critique de plutonium devient plus élevée qu'en prenant en compte une modération par de l'eau : l'eau devient alors meilleur modérateur que le $CH_2$. Cette densité limite est à établir par calcul ; en mode de contrôle par la masse seule, elle est égale à 0,75 (cf. note SERMA/CP2C/NT/17-6251/A) ;
- Le diamètre minimal critique de cylindre est identique quel que soit le modérateur, l'optimum de réactivité étant obtenu à sec (H/Pu = 0).

⇨ En cas de doute sur le pouvoir modérateur d'une matière, il est judicieux de **vérifier par calcul le caractère enveloppe de l'eau** : dans la négative, cette matière doit être prise en compte pour définir le milieu fissile de référence.

⇨ Des **coefficients d'équivalence** entre modérateurs (par exemple, entre le $CH_2$ et l'eau) sont parfois utilisés. Compte tenu de leur variabilité en fonction du rapport de modération, l'utilisation de ces coefficients doit être justifiée sur tout le domaine autorisé.

⇨ Une liste de sources potentielles de modération est indiquée dans la fiche n°12.

*Ce document, élaboré pour la réalisation d'études de sûreté-criticité, est la propriété du CEA. Il ne se substitue en aucun cas à une analyse de sûreté-criticité ou à l'avis d'un ingénieur criticien et ne peut pas servir de référence directe.*

## *Remarques sur les actinides*

⇨ **Définitions** :

- Actinides : éléments de la classification périodique qui suivent l'élément actinium (numéro atomique 89). Il s'agit, en majorité, de l'**uranium**, du **plutonium** et des **transuraniens et transplutoniens artificiels** (Np, Am, Cm, Bk, Cf…) ;
- Actinides mineurs : actinides autres que l'U et le Pu, formés par captures neutroniques successives : ce sont principalement le **neptunium (Np)**, l'**américium (Am)**, le **curium (Cm)** et le **californium (Cf)**.
- Propriétés vis-à-vis de la criticité :
  - ♦ Certains isotopes d'actinides sont **fissiles** : ils peuvent produire une réaction en chaîne entretenue soit avec modération (neutrons thermiques), soit sans modération (neutrons rapides).
    *Exemples : $^{235}U$ ; $^{239}Pu$ ; $^{241}Pu$ ; $^{242m}Am$ ; $^{245}Cm$ ; $^{251}Cf$.*
  - ♦ Tous les isotopes d'actinides sont **fissibles** : ils peuvent produire une réaction en chaîne entretenue sans modération (neutrons rapides). On emploie aussi le terme de « fissiles en milieu rapide ».

⇨ Certains isotopes des actinides mineurs ($^{245}Cm$, $^{243}Cm$, $^{242m}Am$, $^{249}Cf$, $^{251}Cf$, …) présentent, en termes de criticité, des **caractéristiques plus pénalisantes que les isotopes fissiles usuellement rencontrés ($^{235}U$, $^{239}Pu$)**.

- Dans les cas courants, il est néanmoins établi que leur présence dans les combustibles irradiés peut être négligée au regard de leurs faibles proportions et des marges en réactivité apportées par la non-prise en compte de la totalité des PF issus de l'irradiation de ces combustibles ;
- Dans des cas spécifiques conduisant à une proportion accrue de ces isotopes (par exemple pour des combustibles/couvertures neutroniques intégrant ces actinides mineurs, ou pour des situations de séparation chimique), il convient d'en tenir compte dans la définition du milieu fissile de référence.

⇨ **À titre indicatif**, le tableau ci-après présente les masses minimales critiques de certains isotopes d'actinides mineurs. Celles-ci sont obtenues soit à sec (isotopes fissibles [*]), soit à l'optimum de modération (isotopes fissiles). Certaines sont de l'ordre de **quelques dizaines de grammes seulement**.

> **Attention** : Compte tenu des incertitudes existantes sur les sections efficaces et de la qualification des schémas de calcul utilisés pour déterminer les valeurs critiques, il existe, pour certains de ces isotopes, des disparités importantes sur les masses minimales critiques, selon leur origine. Il convient donc d'**être très prudent vis-à-vis de l'utilisation de ces valeurs** et de **recourir à l'avis d'un spécialiste en criticité**.

| Isotope | $^{237}Np$ (*) | $^{241}Am$ (*) | $^{242m}Am$ | $^{243}Am$ (*) | $^{243}Cm$ | $^{244}Cm$ (*) | $^{245}Cm$ | $^{247}Cm$ | $^{249}Cf$ | $^{251}Cf$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Masse minimale critique (kg) | ~ 75 | ~ 65 | **~ 0,023** | ~ 192 | **~ 0,26** | ~ 27 | **~ 0,046** | ~ 2,1 | **~ 0,060** | **~ 0,024** |

*Masses minimales critiques de 10 actinides mineurs sous forme métallique, modérés par de l'eau, à sec ou à l'optimum de modération (cas pénalisant), en réflexion par 20 cm d'eau, obtenues avec le module Sn du code APOLLO2.5.4 à 172 groupes d'énergie (réf. : note SERMA/CP2C/RT/04-3513/A)*

(*) Nota : En milieu modéré, ces isotopes fissibles présentent des sections efficaces de capture stérile élevées et conduisent donc à un effet absorbant.

⇨ **« Règle des 2 % »** : il existe une règle qui stipule que lorsque l'un des 10 isotopes précités est présent en quantité inférieure à **2 % de sa masse admissible** (pour $k_{eff}$ = 0,90), il est négligé du point de vue du risque de criticité, qu'il soit en présence ou non d'uranium ou de plutonium (c.a.d. que ces isotopes ne sont pas pris en considération dans la comptabilité de la matière fissile mise en place pour garantir les limites de criticité). Cette règle est vérifiée par la note SERMA/CP2C/RT/04-3516/A.

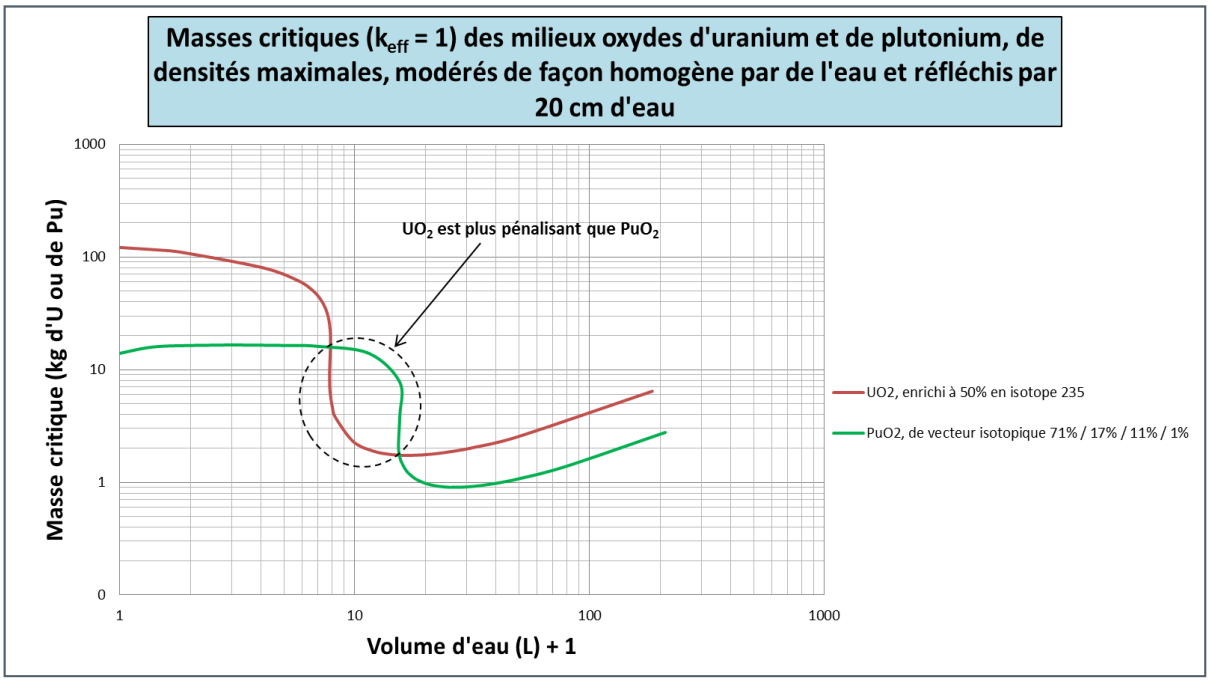



*Ce document, élaboré pour la réalisation d'études de sûreté-criticité, est la propriété du CEA. Il ne se substitue en aucun cas à une analyse de sûreté-criticité ou à l'avis d'un ingénieur criticien et ne peut pas servir de référence directe.*

## *Influence du mode de contrôle de la criticité sur la détermination du milieu fissile de référence*

⇨ **Le mode de contrôle de la criticité retenu peut, dans certains cas, avoir une influence sur la détermination du milieu fissile de référence.**

Exemple 1 : Comparaison entre l'$UO_2$ (50 % en $^{235}U$) et le $PuO_2$ (17 % de $^{240}Pu$) modérés par de l'eau :




- En mode de contrôle par la masse seule : la valeur minimale critique de masse est plus faible pour le $PuO_2$ que pour l'$UO_2$. Le milieu fissile de référence à retenir est alors le $PuO_2$-$H_2O$ ;
- En mode de contrôle par la masse associée à la modération : il existe une plage de modération, comprise entre 7 et 15 L d'eau environ, pour laquelle l'$UO_2$ est plus pénalisant que le $PuO_2$. Le milieu fissile de référence à retenir est alors, pour cette plage de modération, l'$UO_2$-$H_2O$.

Exemple 2 : Comparaison de différentes formes physico-chimiques du Pu (pur en isotope 239, modéré par de l'eau) :

| Forme chimique | Forme physique | Masse minimale critique (g) | Diamètre de cylindre minimal critique (cm) |
|---|---|---|---|
| Oxyde ($PuO_2$) | Cristal (densité 11,46) | 480 | 7,16 |
| Oxyde ($PuO_2$) | Poudre (densité 3,5) | 480 | 10,95 |
| Carbure (PuC) | Cristal (densité 13,6) | 481 | 5,96 |
| Carbure (PuC) | Poudre (densité 3,5) | 481 | 10,45 |
| Nitrure (PuN) | Cristal (densité 14,25) | 484 | 5,94 |
| Nitrure (PuN) | Poudre (densité 3,5) | 484 | 10,54 |

*(cf. note SEC/T/95.12)*

Ces valeurs montrent que le milieu fissile de référence à retenir diffère en fonction du mode de contrôle et de la forme physico-chimique :

- En mode de contrôle par la masse de Pu : $PuO_2$ (à noter toutefois que les valeurs sont quasi-identiques) ;
- En mode de contrôle par la géométrie (de type cylindrique) :
  - PuN (pour le cristal),
  - PuC (pour la poudre de densité 3,5).

*Ce document, élaboré pour la réalisation d'études de sûreté-criticité, est la propriété du CEA. Il ne se substitue en aucun cas à une analyse de sûreté-criticité ou à l'avis d'un ingénieur criticien et ne peut pas servir de référence directe.*