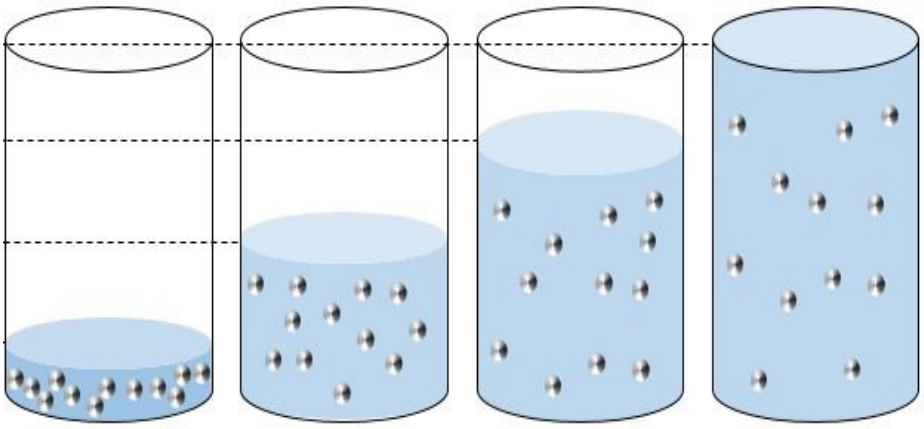
FICHE N°5

LOIS DE DILUTION



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.

Lois de dilution : généralités

⇨ On a vu, dans la fiche n°1, que la réactivité neutronique d'un système dépend notamment :

- Des paramètres neutroniques de la matière fissile (sections efficaces) ;
- De la modération de la matière ;
- De la géométrie dans laquelle est présente cette matière ;
- De paramètres physico-chimiques (densité, concentration...).

⇨ La densité de la matière fissile, la concentration de cette matière dans le milieu et la modération (rapport du nombre de noyaux de modérateur au nombre de noyaux de matière fissile) sont des paramètres liés. **On appelle loi de dilution la fonction qui relie la concentration en matière fissile C(X) (souvent exprimée en g/cm^3) et le rapport de modération M/X (rapport du nombre de noyaux de modérateur** (hydrogène par exemple) **sur le nombre de noyaux fissiles).**

⇨ La loi de dilution permet de rendre compte des effets combinés de la densité du milieu et de la modération. Elle détermine la concentration en soluté d'un mélange soluté-solvant, pour un milieu homogène (matière fissile et matière modératrice mélangés de manière homogène).

⇨ La loi de dilution fait partie du milieu fissile de référence (voir fiche n°4). Elle rend compte du **caractère enveloppe du milieu fissile de référence considéré**.

⇨ Deux types de lois de dilution existent :

- Les lois de dilution **théoriques** : le mélange homogène soluté-solvant est théorique et la loi de dilution est calculée à partir d'hypothèses concernant le mélange ;
- Les lois de dilution **expérimentales** : le mélange homogène soluté-solvant existe réellement et la loi de dilution est déterminée par des mesures expérimentales de masse volumique à différentes concentrations.

⇨ Les lois de dilutions sont intégrées dans le formulaire de criticité CRISTAL (voir fiche n°6).

Principale loi de dilution théorique : la loi d'addition des volumes

⇨ La **loi d'addition des volumes** est une loi théorique très fréquemment utilisée, valable pour une suspension (réelle ou fictive) de soluté dans un solvant. Elle ne s'applique pas aux solutions (volume non conservé par mélange).

⇨ Principe de la loi d'addition des volumes :

$$V_{total} = V_{soluté(mil.fissile)} + V_{solvant(eau,...)}$$

⇨ En conséquence, pour un élément X pur qui se dilue dans de l'eau, la fonction qui relie C(X) à H/X est de la forme :

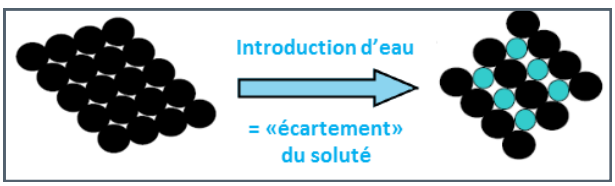
$$C(X) = \frac{M_X}{\frac{M_X}{\rho_X} + \frac{1}{2} \times \left(\frac{M_{H_2O}}{\rho_{H_2O}} \right) \times \left(\frac{H}{X} \right)}$$

avec : M_X : masse molaire de X (g/mol)
ρ_X : masse volumique de X (g/cm^3)

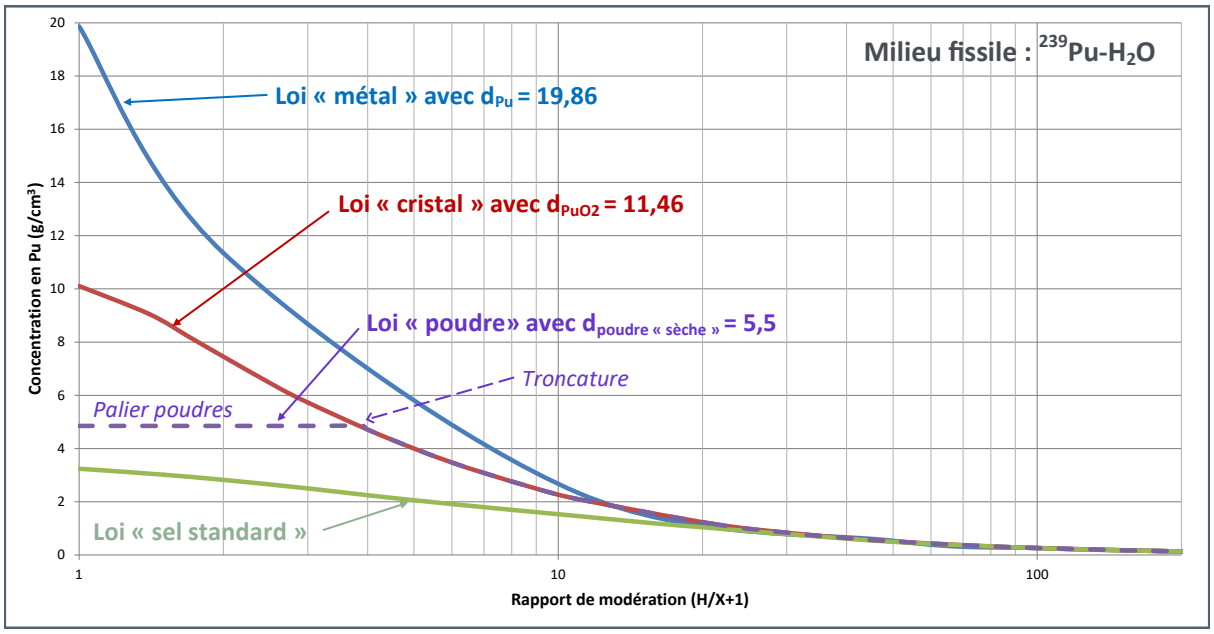
⇨ Ce mélange « soluté-solution » n'a pas nécessairement de réalité physique : il s'applique à tout milieu fissile artificiellement « dilué » dans un autre milieu.

Définitions théoriques :

- Un **soluté** est une substance contenue à l'état dissous dans une solution (ex : uranium) ;
- Un **solvant** est un liquide qui a la propriété de dissoudre et de diluer d'autres substances (ex : eau) ;
- Une **solution** est un mélange homogène d'un ou plusieurs soluté(s) et solvant(s), constituant une seule phase (le solvant dissout le soluté) ;
- Une **suspension** est un mélange hétérogène d'un soluté et d'un solvant, constituant deux phases (le solvant ne dissout pas le soluté : il ne fait qu'écarter les molécules).



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.



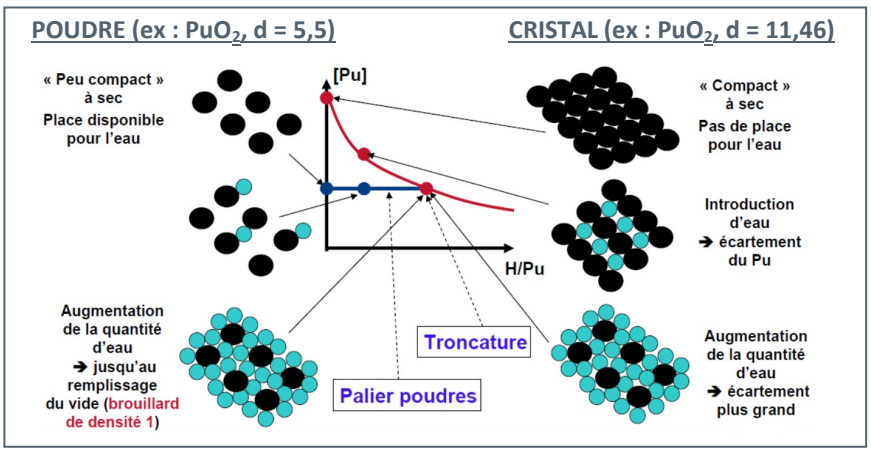
Nota : À H/X très élevé, les lois de dilution convergent : en effet, on a alors : volume total ≈ volume du modérateur.

⇨ **Loi « métal » :** elle correspond à un bloc de métal massif qui se désagrègerait et se disperserait de plus en plus dans le modérateur (ex : eau), la concentration en matière fissile variant entre la masse volumique du métal pur et 0 (milieu infiniment dilué). Vis-à-vis du risque de criticité, cette loi conduit aux valeurs des paramètres de criticité les plus faibles (donc présentant les marges de sécurité les plus grandes), aucun autre milieu fissile ne pouvant avoir une concentration en matière fissile plus élevée.

⇨ **Loi « cristal » :** elle correspond à un bloc d'oxyde, de densité maximale théorique, qui se désagrègerait et se disperserait de plus en plus dans le modérateur (ex : eau), la concentration en matière fissile variant entre la masse volumique de l'oxyde pur et 0 (milieu infiniment dilué).

⇨ **Loi « poudre » :** la loi « poudre » est identique à la loi « cristal » avec une condition supplémentaire qui est que la concentration est toujours inférieure ou égale à la densité apparente de la poudre sèche ($C(X) \leq d_{poudre}$) :

- La partie horizontale de la courbe où $C(X) = d_{poudre}$ est appelée « **palier poudres** » : sur tout ce palier, l'ajout d'eau ne fait que combler les espaces disponibles entre les molécules de soluté, sans les écarter ;
- Le point où le « palier poudres » coïncide avec la loi cristal est appelé « **troncature** ».



⇨ **Loi « sels standard » (UO_2F_2 et PuO_2F_2) :** c'est une loi qui prend la forme : $C(X) = \frac{1}{a + b \times \frac{H}{X}}$
avec a et b variables en fonction de la modération.

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.

Principales lois de dilution expérimentales

⇨ **Lois « nitrate »** :

- Ces lois sont établies à partir de mesures des masses volumiques de solutions réelles et à partir de méthodes théoriques de mélange des solutions (appelées **méthodes isopiestiques**) ;
- Elles sont utilisées principalement pour les solutions en milieu nitrique : $UO_2(NO_3)_2$, $U(NO_3)_4$, $Pu(NO_3)_4$, $Pu(NO_3)_3$, qui se retrouvent généralement dans :
  - ♦ Les usines de traitement de combustibles irradiés (UP1, La Hague…),
  - ♦ Les laboratoires d'étude du traitement et de la séparation des combustibles irradiés (ATALANTE…) ;
- Ces lois isopiestiques sont utilisées depuis les années 2000 ; les notes de calcul réalisées avant cette date utilisent d'anciennes lois.

⇨ **Loi de dilution « expérimentale » de l'oxyfluorure d'uranium UO_2F_2** :

- Cette loi est plus pénalisante que la loi théorique « sel standard » ;
- Elle est, par exemple, utilisée pour des installations du site ORANO du Tricastin pour les configurations anormales conduisant à un contact UF_6/eau.

Remarques et cas particuliers

⇨ À titre d'information, les lois disponibles dans le formulaire CRISTAL (version 2.0) sont les suivantes :

Lois en U :

- U métal
- UO_2
- UF_4
- UO_3
- U_3O_8
- UF_6-HF
- UO_2F_2 révisée
- UO_4-$4H_2O$
- UO_4-$4H_2O$ révisée
- UZr_xH_y

Lois en Pu :

- Pu métal
- PuO_2
- PuF_4

Lois en U+Pu :

- UPu métal
- $UPuO_2$
- UPuC
- UPuN

Autres lois :

- Loi généralisée des solutés
- Nitrates
- Sels standard
- Oxyde-Nitrate
- Milieu irradié

⇨ **Cas particulier des poudres :**

- Lors de la fabrication des pastilles de combustibles, la densité de la poudre augmente. Par exemple, dans le cas de l'oxyde mixte uranium-plutonium (MOX) :
  - ♦ La densité initiale de la poudre est de 3,5,
  - ♦ La densité du mélange primaire après broyage est de 5,5,
  - ♦ La densité des pastilles crues ou frittées est de l'ordre de 11 ;
- La densité à retenir pour le milieu fissile de référence peut donc être la densité maximale de la poudre correspondant à l'étape de la fabrication concernée. La démarche peut aussi consister à prendre la densité la plus élevée, soit celle des pastilles frittées, pour l'ensemble de la fabrication ;
- Il convient de souligner que la densité correspondant au cristal, $d_{cristal}$, est la densité la plus élevée du milieu dit « poudre » (10,96 pour l'oxyde d'uranium et 11,46 pour l'oxyde de plutonium). Elle reste néanmoins inférieure à celle du métal ;
- La prise en compte, dans la loi de dilution, d'une densité de poudre inférieure à la densité théorique du cristal, doit être justifiée dans l'analyse de sûreté-criticité.

⇨ **Cas particulier des lois UO_2F_2 et PuO_2F_2 :**

- La loi « sels standard » (UO_2F_2, PuO_2F_2, $(UO_2+PuO_2)F_2$) correspond à la loi de dilution considérée comme enveloppe, au regard du risque de criticité, de tous précipités uranifères et plutonifères ;
- La loi UO_2F_2 « expérimentale » correspond au « vrai » milieu UO_2F_2 obtenu par contact entre l'UF_6 et l'eau. La loi UO_2F_2 expérimentale est plus pénalisante que la loi théorique « sels standard ».

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.