

LA CRITICITÉ DES COMBUSTIBLES USÉS : comment tirer profit des marges créées par leur usure ?

Pour les besoins des dossiers de sûreté-criticité sur des situations impliquant des combustibles usés telles que l'entreposage, le transport, le traitement..., les études sont toujours menées de manière très conservatoire en considérant les combustibles comme neufs, c'est-à-dire avec la teneur maximum en matière fissile : uranium 235, plutonium 239, plutonium 241. Or, au cours de l'irradiation en réacteur, la composition du combustible est fortement modifiée, conduisant à une diminution de sa réactivité. La prise en compte de cet effet, appelé "crédit burn-up", dans les analyses de sûreté-criticité, permet d'optimiser de façon notable le dimensionnement de certaines installations nucléaires et d'entraîner ainsi un gain économique tout en gardant les marges de sécurité nécessaires.



Piscine d'entreposage des combustibles usés à l'usine de traitement de la Hague. La prise en compte du CBU autorisera l'entreposage de combustibles initialement plus enrichis en uranium 235.

Harry Gruyaert/Magnum - Cogema

Des nucléides anti-réactifs

Dans un **réacteur à eau sous pression (REP)** (encadré E, *Les principaux éléments d'un REP*), lors de l'irradiation **neutronique** du combustible, constitué d'oxyde d'uranium **enrichi** en son **isotope 235 (UOX)** ou d'un mélange d'oxydes d'uranium et de plutonium (**MOX**), il se forme des **produits de fission** issus de la **fission** de l'uranium et du plutonium, et des noyaux lourds engendrés par **captures** successives de neutrons ou par des **réactions** de type **(n,2n)** généralement suivies par des **désintégrations β^-** ou **α** (encadré B, *Les différents types d'interaction entre un neutron et un noyau*). Ces noyaux lourds regroupent les **actinides majeurs** (uranium et plutonium) et les **actinides mineurs** (neptunium, américium et curium). Ces variations de composition

réduisent la **réactivité** du combustible. Les actinides non **fissiles** et les produits de fission sont dits **anti-réactifs**. Pendant la combustion (*burn-up*) en réacteur, les produits de fission sont également capables d'absorber des neutrons. En effet, la plupart d'entre eux présentent des **sections efficaces** de capture neutronique très élevées, entraînant un important **empoisonnement** du combustible, qui augmente avec la durée de l'irradiation.

Les outils de calcul de sûreté-criticité, développés dans les années soixante-dix, qui ne tenaient pas compte dans le combustible UOX de la consommation des matières fissiles et de la production de **nucléides** anti-réactifs au cours de la combustion, ont conduit dans le passé à prendre des marges de sécurité qui peuvent paraître aujourd'hui excessives au regard de l'optimisation du dimensionnement des installations.

Dans les années quatre-vingt, lors de la conception de l'usine de traitement UP3 des combustibles usés sur le site de Cogema-la Hague (Manche), une certaine valeur de crédit *burn-up* (CBU) a été prise en compte dans l'optimisation du dimensionnement de cette nouvelle installation de plus grande capacité. Cependant, à cette époque, seules les données sur les principaux actinides ont été jugées comme suffisamment qualifiées pour être considérées, la totalité du CBU n'a donc pas été prise en compte.

Au début des années quatre-vingt-dix, le modèle CBU est défini avec la prise en compte de l'évolution des actinides majeurs, de la production d'actinides mineurs et des quinze produits de fission stables ou à durée de vie longue et non volatils les plus anti-réactifs (tableau 1). Cette sélection de nucléides

actinides	anti-réactivité (pcm)	produits de fission	anti-réactivité (pcm)
uranium 235		samarium 149	- 1 030
uranium 238		rhodium 103	- 1 360
plutonium 239		néodyme 143	- 900
plutonium 240	- 8 370	césium 133	- 750
plutonium 241		gadolinium 155	- 1 550
plutonium 242	- 710	samarium 151	- 500
actinides majeurs	- 9 080	samarium 152	- 490
		technétium 99	- 440
uranium 236	- 910	néodyme 145	- 410
neptunium 237	- 620	europium 153	- 390
plutonium 238	- 310	molybdène 95	- 290
américium 241	- 1 290	samarium 147	- 230
américium 243	- 280	samarium 150	- 270
actinides mineurs	- 3 410	argent 109	- 250
		ruthénium 101	- 220
total actinides	- 12 490	total produits de fission	- 9 080



Tableau 1. Anti-réactivité des nucléides retenus pour les études de prise en compte du CBU pour un combustible d'oxyde d'uranium (UO₂) irradié à un taux de combustion de 40 000 MW·j/t et refroidi 5 ans, et contribution de ces catégories de nucléides à l'anti-réactivité totale du combustible (CBU associé). L'ensemble de ces nucléides correspond à 90 % de l'anti-réactivité totale, les quinze produits de fission représentant 80 % de l'empoisonnement total des produits de fission formés.

	prise en compte du CBU	CBU associé	pourcentage cumulé
aujourd'hui	des actinides majeurs	38 %	38 %
à court terme (2003)	des principaux produits de fission	38 %	76 %
à moyen terme	des actinides mineurs	14 %	90 %

Tableau 2. Les étapes de la prise en compte du CBU.

a été adoptée par le groupe d'experts en calculs de **criticité** de l'Agence pour l'énergie nucléaire (AEN) de l'OCDE (Organisation pour la coopération et le développement économique). À partir de cette réflexion d'experts, un programme de recherche et développement a démarré en France en 1995, en collaboration tripartite entre le CEA, l'IPSN et Cogema. Le programme mis en œuvre a pour objectif de qualifier les quinze produits de fission retenus. Il s'achèvera en 2003 et devrait alors permettre l'introduction des principaux produits de fission dans les études de sûreté. À moyen terme, un programme de qualification des actinides mineurs sera mis en œuvre (tableau 2).

Les besoins des industriels et les avantages escomptés

Pour Cogema, les besoins de prise en compte de CBU s'inscrivent dans trois domaines d'activité : le *transport* des assemblages de combustible usé des réacteurs nucléaires à l'usine de

la Hague, avec notamment la *mise au point de nouveaux emballages de transport* plus performants ; l'*entreposage* des assemblages sur le site de la Hague ou dans le cadre d'études de conception d'installations d'entreposage pour différents clients ; le *traitement* du combustible usé sur le site de la Hague.

Le transport de combustible usé

Pour un emballage de transport donné, le CBU autorise le transport d'assemblages de combustible plus réactif, c'est-à-dire ayant un enrichissement initial en uranium 235 plus élevé à **taux de combustion** fixé. Dans le cadre de l'élaboration de nouveaux emballages de transport, le CBU permet de transporter davantage d'assemblages ou bien d'alléger la structure de l'emballage par rapprochement des assemblages. En effet, le rapprochement des assemblages rend l'ensemble plus réactif, cette augmentation de réactivité étant compensée par l'anti-réactivité prise en compte par

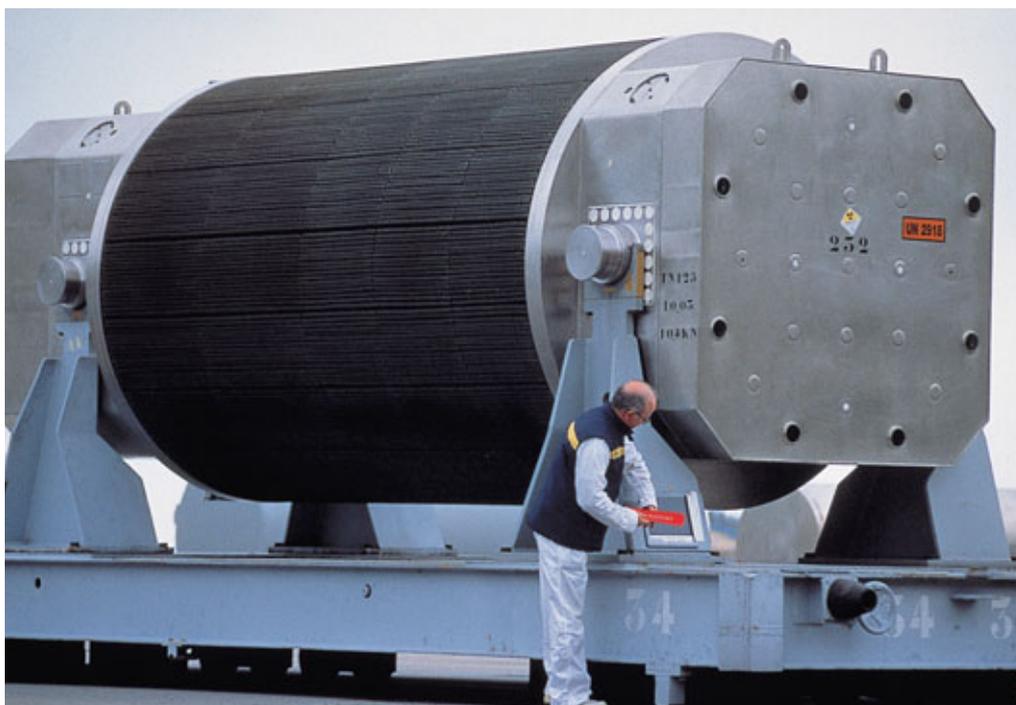
le CBU. Dans ces conditions, le coût du transport de combustible usé est réduit.

L'entreposage en piscine

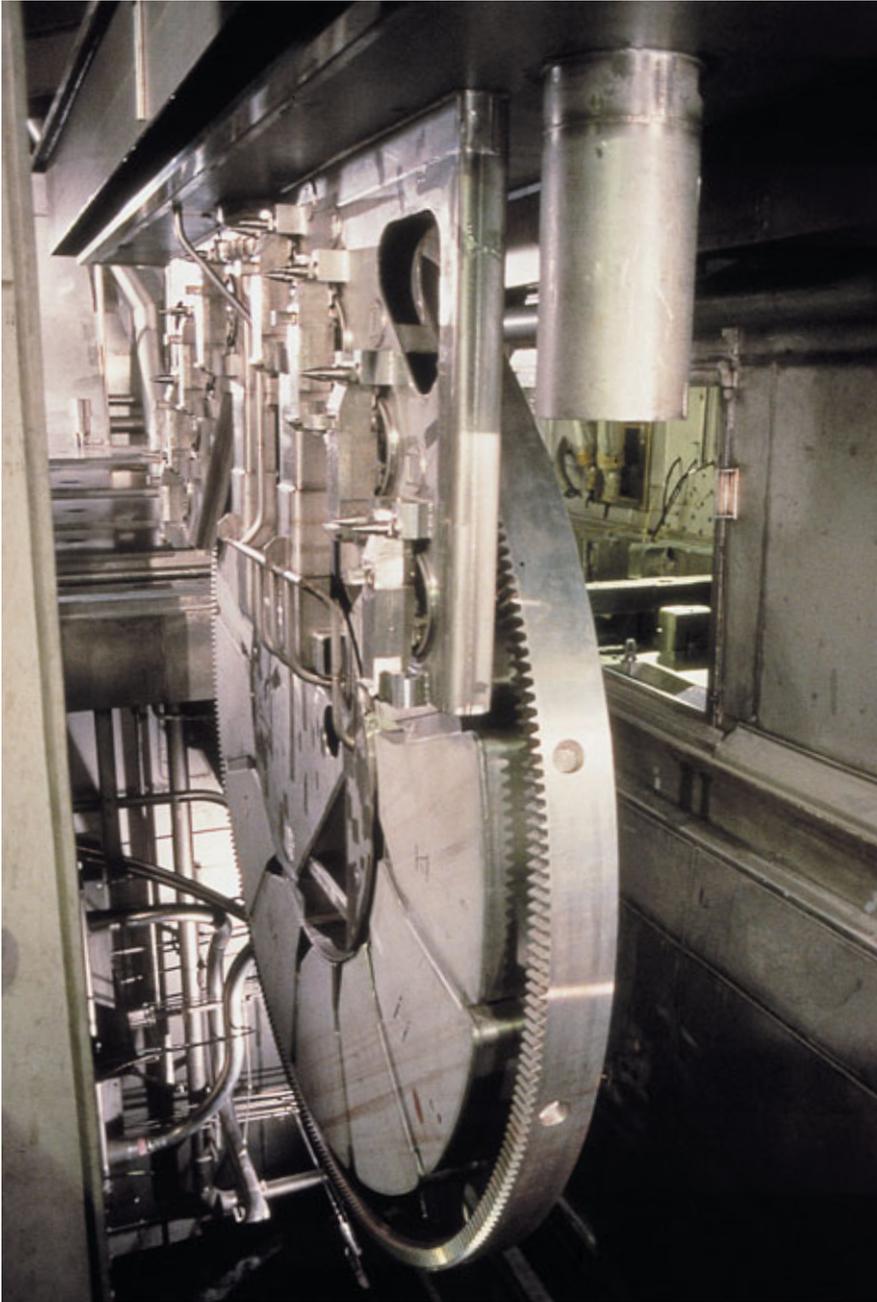
Dans les piscines d'entreposage existantes, dimensionnées il y a vingt ans pour un type d'assemblage de combustible usé, le CBU rend possible l'entreposage d'assemblages de combustible plus enrichi initialement, car destiné à être irradié plus longtemps, ce qui correspond à l'évolution actuelle. Dans la mise au point de nouvelles installations d'entreposage, et pour un type d'assemblages donné, le CBU permettra à terme à Cogema de pouvoir proposer des concepts d'entreposage plus compacts, donc plus économiques.

Le traitement des combustibles usés

Malgré l'augmentation de l'enrichissement initial du combustible reçu sur le site de la Hague, le CBU autorise le maintien des mêmes cadences de traite-



● ● ● ● ●
Emballage de transport d'assemblages de combustible usé. La prise en compte du CBU permettra de transporter davantage d'assemblages ou d'optimiser la structure de l'emballage.



Sidney Jezequel/Cogema

ment, qui sont de l'ordre de 4 tonnes de combustible par jour, sur chacune des deux usines UP3 et UP2-800. Cette cadence est imposée par l'atelier de tête de production, en l'occurrence l'atelier de cisailage et de dissolution des assemblages de combustible. Là, les assemblages (faisceaux de crayons de 20 cm de diamètre environ et de 4 m de haut) sont découpés en tronçons de 3 à 4 cm de long. Après cisailage, ces tronçons appelés *coques* tombent dans le godet en position d'alimentation de la roue d'un dissolvant rotatif. Cette roue baigne dans une solution d'acide nitrique chaud qui assure la dissolution de la matière nucléaire contenue dans les coques.

Un exemple d'intérêt du CBU

Ce cas d'application du CBU traite d'un nouveau concept de paniers d'entreposage d'assemblages de combustible usé en piscine. Ce type de panier, pouvant contenir 9 assemblages, est plus compact que les paniers actuels des piscines de la Hague. Une étude de sûreté-criticité permet, à l'aide du **logiciel CEA de calcul de neutronique** Apollo, de déterminer, pour un taux de combustion donné, l'enrichissement initial maximal admissible du combustible d'oxyde d'uranium de **réacteurs à eau sous pression (REP)**, dans des assemblages constitués



L'une des roues du dissolvant de l'atelier de cisailage et de dissolution des assemblages de combustible usé à l'usine de traitement de la Hague. La prise en compte du CBU permettra de traiter des combustibles initialement plus enrichis en uranium 235 avec les mêmes cadences.

d'un réseau de 17×17 crayons combustible. Cet enrichissement maximal admissible est obtenu quand les assemblages sont jugés décentrés dans leurs alvéoles (figure 1). Le résultat montre que sans CBU, c'est-à-dire à taux de combustion considéré comme nul, l'enrichissement maximal admissible est d'environ 3,4 %. Aujourd'hui, les enrichissements du combustible des assemblages présents dans les cœurs des REP sont compris entre 3,7 % et 4,1 %. EDF envisage, dans les dix années à venir, d'augmenter ces niveaux d'enrichissement jusqu'à 4,9 %.

Seule la prise en compte du CBU autorise ces niveaux d'enrichissement. Par exemple, pour un taux de combustion de $10\,000 \text{ MW}\cdot\text{j/tU}^{(1)}$, l'enrichissement maximal admissible passe ainsi à plus de 4 % dans le cas actuel où uniquement les actinides majeurs sont pris en considération, à plus de 4,5 % si les six premiers produits de fission du tableau 1 sont introduits et à plus de 4,6 % lorsque les quinze produits de fission du tableau 1 sont inclus. Cet exemple met en évidence l'intérêt des différents niveaux de la prise en compte du CBU pour ce nouveau concept de panier.

calcul qualifiée pour déterminer les abondances des nucléides, actinides et produits de fission, présents dans les combustibles usés et l'anti-réactivité apportée par ces isotopes dans différentes configurations. Pour ce faire, une chaîne de calcul basée sur le couplage des **formulaires** Darwin et Cristal (voir *Cristal : un outil de calcul de criticité de nouvelle génération*) est utilisée. Darwin permet de calculer l'évolution, en réacteur et au cours du refroidissement, des grandeurs physiques d'intérêt, notamment l'abondance de chaque nucléide, pour le cycle des combustibles quelle que soit la filière (**réacteurs à eau sous pression REP, à eau bouillante REB, à neutrons rapides RNR...**). Il donne en particulier les moyens d'intégrer l'historique détaillé de l'assemblage.

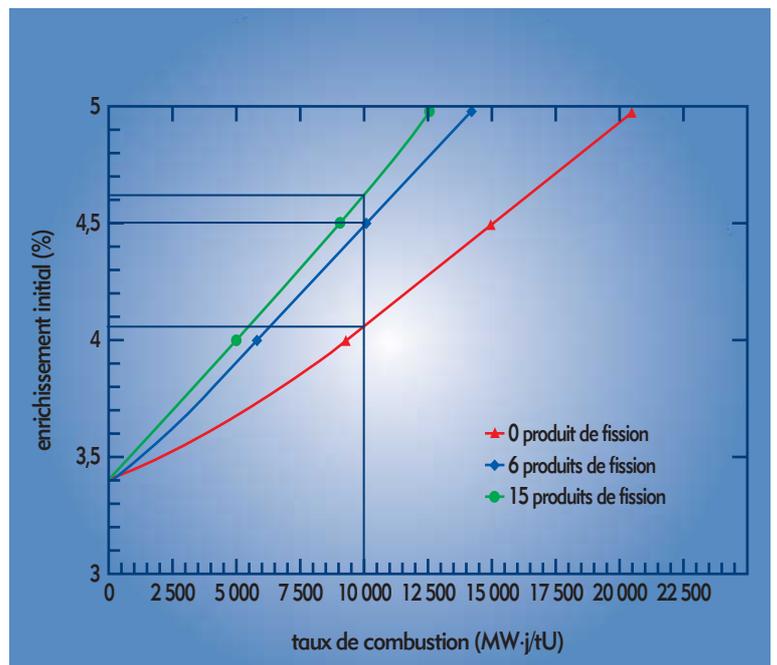
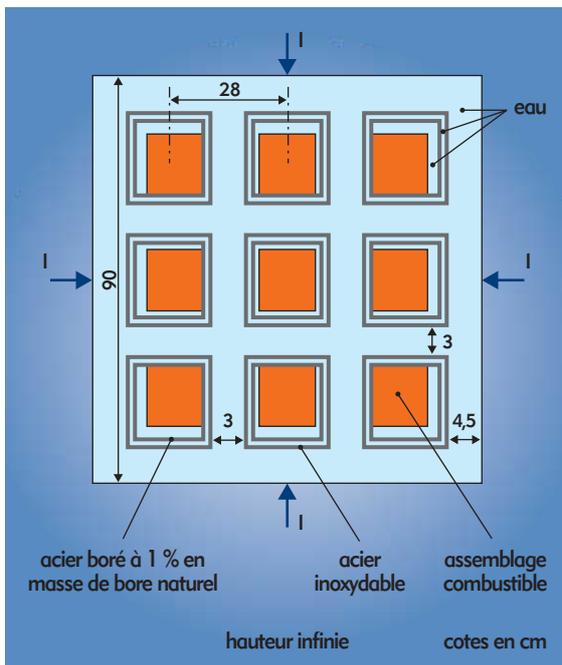
Le calcul du CBU fait apparaître des problèmes physiques spécifiques comme l'**autoprotection** des **résonances** des produits de fission, qui empêche les neutrons

Figure 1. À gauche, nouveau concept de panier d'entreposage d'assemblages de combustible utilisé en piscine montrant le cas pénalisant où les assemblages sont décentrés dans leurs alvéoles. Ce cas correspond à l'enrichissement initial maximal admissible du combustible. À droite, enrichissement initial maximal admissible pour les assemblages d'oxyde d'uranium en fonction du taux de combustion donné, l'enrichissement initial maximal admissible augmente lorsque, outre les actinides majeurs, 6 produits de fission puis 15 sont pris en compte.

La chaîne des logiciels de calcul du CBU

La prise en compte du CBU dans les études de sûreté-criticité nécessite de disposer d'une chaîne de logiciels de

(1) L'unité usuelle donnant le niveau de combustion des assemblages, c'est-à-dire l'énergie extraite de l'assemblage en réacteur, est le mégawatt-jour. Ce niveau de combustion est exprimé par unité de masse de combustible, soit la tonne d'uranium initial ($\text{MW}\cdot\text{j/tU}$). $1 \text{ MW}\cdot\text{j} = 3\,600 \cdot 24 \cdot 10^6 = 8,6 \cdot 10^{10}$ joules. Le niveau d'irradiation actuel des assemblages est d'environ $50\,000 \text{ MW}\cdot\text{j/t}$. Un assemblage avant irradiation contient entre 450 kg et 550 kg d'uranium.





Installation Comir du CEA/Cadarache où sont effectuées des mesures physiques d'échantillons de combustibles irradiés.



CEA

de disparaître dans le réacteur à cause des gigantesques sections efficaces de capture de ces nucléides. Ce problème est traité avec le découpage, plus fin, à 172 groupes d'énergie dans Apollo2 et l'introduction dans la bibliothèque CEA93 des sections efficaces effectives. Par ailleurs, des études ont montré qu'au-delà d'un taux de combustion moyen par assemblage de 30000 MW·j/t, il faut prendre en compte un profil axial de taux de combustion pour améliorer la précision des calculs. En effet, les parties extrêmes de l'assemblage sont moins irradiées, donc plus réactives. Dans ce cas, le formulaire Darwin rend possible le calcul des variations axiales des compositions des nucléides en fonction du taux de combustion axial.

De nombreux programmes expérimentaux

Pour qualifier les calculs de prise en compte du CBU, de nombreux programmes expérimentaux ont été lancés. Ils contribueront à la qualification expérimentale du formulaire Darwin pour le calcul des "bilans matières" des nucléides

(2) La méthode de mesures par oscillations d'échantillons consiste, dans un réacteur critique, à provoquer de petites perturbations périodiques de certaines propriétés neutroniques qui vont entraîner une variation du facteur de multiplication effectif de façon à obtenir la variation de réactivité $\Delta\rho$ introduite par l'échantillon considéré.

avec des analyses d'échantillons de combustibles irradiés et à celle du formulaire Cristal pour le calcul de l'effet en réactivité avec des mesures d'anti-réactivité de chacun des produits de fission et des mesures globales intégrant les produits de fission et les actinides.

Les analyses de combustibles irradiés

Pour compléter les programmes d'analyses d'actinides menés en collaboration entre le CEA, EDF et Framatome, des programmes d'analyses des produits de fission contribuant au CBU ont été mis en œuvre dans le cadre des programmes d'intérêt commun entre le CEA et Cogema. Des tronçons de combustibles irradiés sont prélevés puis dissous dans l'installation Comir du CEA/Cadarache. Des prélèvements sont ensuite analysés dans les laboratoires du CEA/Saclay. Les résultats d'analyses des nucléides mentionnés dans le tableau 1 couvrent les domaines suivants :

- REP(UOX) : taux de combustion compris entre 15 000 MW·j/t et 63 000 MW·j/t ;
- REP(MOX) : taux de combustion compris entre 10 000 MW·j/t et 43 000 MW·j/t ;
- REB(UOX) : taux de combustion compris entre 20 000 MW·j/t et 43 000 MW·j/t.

Les incertitudes expérimentales sont inférieures à 1 % pour les isotopes de

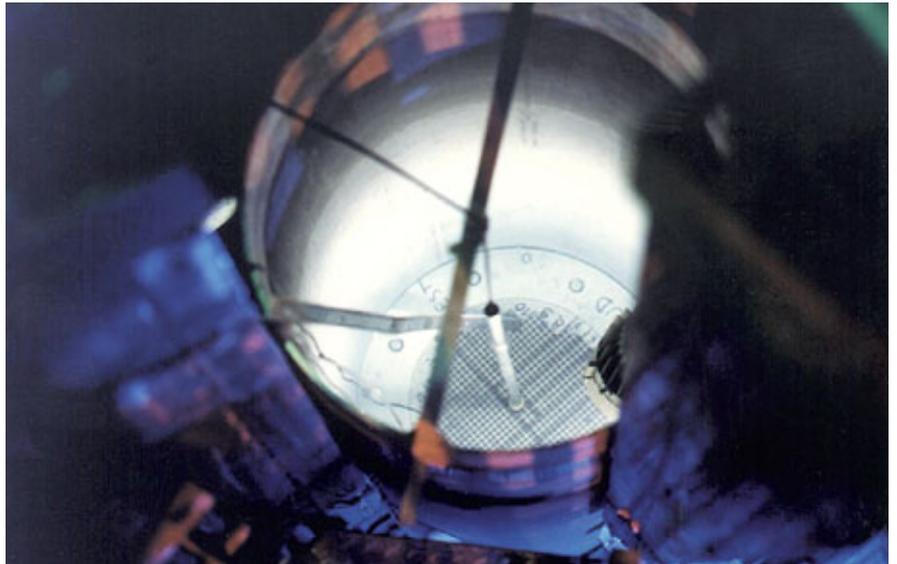
l'uranium et du plutonium et sont comprises entre 2 % et 8 % pour les autres actinides et les produits de fission.

Les mesures d'effet en réactivité

Des programmes d'intérêt commun entre le CEA et Cogema ont été lancés dans le réacteur expérimental Minerve de la Direction de l'énergie nucléaire au CEA/Cadarache et dans l'appareillage B de l'IPSN au CEA/Valduc.

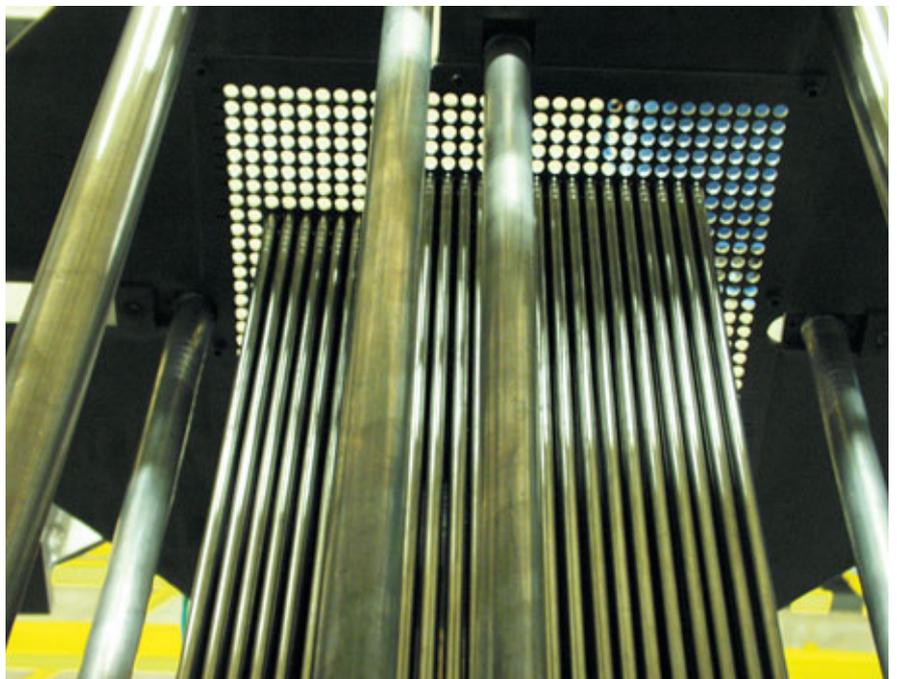
Dans Minerve, l'effet en réactivité d'un échantillon est mesuré par une succession d'oscillations⁽²⁾ dans un réseau expérimental représentatif des conditions neutroniques industrielles. Cette méthode permet d'obtenir une précision expérimentale globale d'environ 3 % sur la mesure. Deux types d'échantillons sont "oscillés" : les quinze produits de fission retenus pour le CBU pris séparément pour mesurer leur section efficace de capture neutronique individuelle et des tronçons de combustibles irradiés pour mesurer la perte de réactivité globale (produits de fission + actinides) de différents types de combustibles irradiés (UOX et MOX) couvrant des taux de combustion compris entre 15000 MW·j/t et 63000 MW·j/t. Les réseaux expérimentaux étudiés sont représentatifs des conditions de transport et d'entreposage de combustibles REP(UOX), REP(MOX) et REB(UOX) usés et des

Vue du cœur expérimental de Minerve au CEA/Cadarache. Des mesures de sections efficaces de capture neutronique de produits de fission et des mesures de perte de réactivité globale de divers combustibles irradiés y sont réalisées.



M. Faugère/CEA

Réseau de crayons combustible sur l'appareillage B du CEA/Valduc. Des produits de fission en solution, isolés ou mélangés, sont mis en interaction avec des réseaux de crayons UOX.



IPSN

conditions de dissolution de combustibles UOX et MOX.

Dans l'appareillage B, les expériences intégrales, prenant en compte les six premiers produits de fission contribuant au

(3) Procéder à une approche sous-critique consiste à faire varier lentement un paramètre caractéristique de la réactivité du milieu ou de la configuration qui peut être, par exemple, la hauteur d'eau dans la cuve contenant les réseaux de crayons combustible. L'eau, qui joue le rôle de **modérateur**, est introduite dans la cuve jusqu'à ce que le coefficient de multiplication k_{eff} atteigne une valeur très légèrement inférieure à 1 (système sous-critique). La hauteur d'eau qui rendrait le système critique est calculée par extrapolation.

CBU, permettent de mesurer la grandeur physique d'intérêt (k_{eff}) dans une géométrie représentative des configurations industrielles. Les expériences, menées par approche sous-critique⁽³⁾, nécessitent une approche expérimentale graduelle, des configurations les plus simples aux plus complexes : produits de fission dans un boîtier au centre d'un réseau de crayons UOX noyés dans l'eau ; réseau de crayons UOX noyés dans une solution d'uranium et de produits de fission.

Les nombreuses mesures effectuées lors de ces programmes expérimentaux contribueront à la qualification des sections efficaces des quinze produits de fission et à celle de la chaîne de logi-

ciels de calcul Darwin-Cristal pour la prise en compte du CBU. Le programme Osmose, en cours d'élaboration au CEA/Cadarache, permettra de compléter cette base expérimentale avec les mesures dans Minerve des sections efficaces des actinides mineurs.

Jean-Paul Grouiller
Département d'étude des réacteurs
Direction de l'énergie nucléaire
CEA/Cadarache

et **Hervé Toubon**
B. U. Traitement
Direction projet et prospective
Cogema