

# CONCEPT DE REACTEURS A SELS FONDUS EN CYCLE THORIUM SANS MODERATEUR

D. HEUER, L. MATHIEU, E. MERLE-LUCOTTE  
Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie de GRENOBLE  
5 3 Avenue des Martyrs 38026 Grenoble Cedex  
Contact : heuer@lpsc.in2p3.fr

## RESUME

Les Réacteurs à Sels Fondus (RSF) en cycle thorium ont été étudiés dans les années 1960-1980 pour aboutir au concept de Molten Salt Breeder Reactor (MSBR) qui ne fut finalement pas retenu pour un développement industriel. Le CNRS, en collaboration avec EDF, s'est intéressé à nouveau à ce concept pour le généraliser et trouver des configurations assurant aussi bien un haut niveau de sûreté intrinsèque qu'un inventaire initial compatible avec un déploiement mondial intensif ou encore un retraitement chimique accessible. Le Thorium Molten Salt Reactor (TMSR) ainsi défini est étudié en cycle Th-<sup>233</sup>U direct mais aussi dans le cas d'un démarrage au plutonium pour palier à une carence initiale d'<sup>233</sup>U. Les résultats obtenus sont très prometteurs et donnent maintenant lieu à un vaste programme expérimental sur l'ensemble des points clés du concept dans le but de pouvoir définir à terme un TMSR de démonstration.

## I. INTRODUCTION

Le concept de réacteur à sel fondu (RSF) a été imaginé au début des années 1950 à l'Oak Ridge National Laboratory (ORNL) au Tennessee. Il s'agissait de concevoir des réacteurs dont le combustible serait liquide et de ce fait servirait aussi bien de combustible que de caloporteur. L'intérêt premier de ce concept est de pouvoir ajuster en continu la composition du sel combustible et de ce fait de ne pas demander l'introduction d'une réserve de réactivité pour assurer son fonctionnement dans le temps. Par ailleurs, il est possible d'atteindre de très hautes températures et de très fortes densités de puissance sans pression interne importante et donc, sans contraintes insupportables par les éléments de structure. Le premier RSF expérimental était issu d'un programme militaire américain sur la propulsion des avions qui a conduit à l'Aircraft Reactor Experiment (ARE)<sup>1</sup> en 1954. Ce réacteur de 2,5 MWth a fonctionné de manière satisfaisante durant une centaine d'heures. La poursuite de ces travaux a mené à la mise en service du Molten Salt Reactor Experiment (MSRE)<sup>2</sup> de 8 MWth. Ce réacteur basé sur un sel fluorure de lithium, de béryllium et de zirconium a fonctionné avec de l'uranium enrichi à 30% de 1965 à 1968, puis à l'<sup>233</sup>U de 1968 à 1969 et enfin au plutonium en 1969. Le succès de ce réacteur a justifié l'étude d'un réacteur surgénérateur de puissance à support thorium et associé à une unité de retraitement pour extraire les produits de fission en ligne : le Molten Salt Breeder Reactor (MSBR)<sup>3,4</sup>. Alors que le concept semblait prometteur, les études sont définitivement arrêtées en 1976.

Les études sur ce type de réacteurs sont toutefois reprises dès les années 80 aussi bien au Japon avec les projets Thorims-NES<sup>5</sup> puis FUJI-AMSB<sup>17</sup> qu'en France avec la poursuite des études sur le MSBR par EDF et le CEA. Dans les années 90 le concept est repris dans le but d'incinérer les déchets nucléaires avec des réacteurs sous critiques comme le projet TIER-1<sup>6</sup> proposé par C. Bowman pour dégrader le plutonium des réacteurs à eau pressurisée, ou le projet TASSE<sup>7</sup> du CEA ou encore le projet AMSTER<sup>8</sup> d'EDF.

Dés 1997, le CNRS s'intéresse à ce type de réacteurs en s'impliquant dans l'étude du TIER-1<sup>9</sup>, mais c'est à partir de 1999 que des études plus complètes sont menées pour réévaluer le MSBR dans le but de proposer un réacteur critique basé sur le cycle thorium pour la production d'énergie<sup>10,11</sup>. Cette réévaluation conduit à, au moins, deux résultats importants remettant en cause le concept MSBR : d'une part le coefficient de température s'avère être globalement positif, ce qui rend le réacteur intrinsèquement instable, et d'autre part l'unité de retraitement apparaît comme incertaine du point de vue de son fonctionnement et probablement trop imposante pour assurer une rentabilité économique. Aux vues de ces constatations, nous avons entrepris une étude systématique des RSF dans le but de résoudre les difficultés rencontrées et d'optimiser le comportement du réacteur dans le cadre d'un déploiement mondial de la filière thorium<sup>12,13,14</sup>.

Ce travail est basé sur le couplage du code de transport de neutrons MCNP<sup>15</sup> avec le code d'évolution des matériaux REM<sup>10,12</sup> développé au CNRS. Le premier code calcule le flux de neutrons et les taux de réaction dans les cellules

composant le réacteur, tandis que le second code résout les équations de Bateman afin d'évaluer l'évolution de la composition des matériaux dans les cellules. Ces calculs prennent en compte des paramètres d'entrée comme la puissance générée, le niveau de criticité ou la chimie, en ajustant régulièrement le flux de neutrons et la composition des matériaux. Nos simulations reposent sur une description précise de la géométrie du cœur et prennent en considération plusieurs milliers d'isotopes avec leurs interactions et leurs désintégrations radioactives. Tout ceci permet une interprétation minutieuse et approfondie des résultats obtenus.

## II. LE REACTEUR A SELS FONDUS EN CYCLE THORIUM (TMSR)

### II.1 DESCRIPTION GENERALE DU TMSR

Le concept général de Thorium Molten Salt Reactor (TMSR) consiste en un réacteur de 1 GWe modéré au graphite et basé sur le cycle du combustible  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . Sa température de fonctionnement est de 630 °C ce qui correspond à un rendement thermodynamique de 40%. La matrice modératrice est composée d'un réseau de barreaux en graphite de forme hexagonale de 15 cm de côté, percés en leur centre par des canaux cylindriques permettant le passage du sel combustible. La densité de ce graphite, de qualité nucléaire, est de 1,86. Le sel combustible utilisé est un fluorure de lithium, de thorium et d'uranium. La proportion de noyaux lourds (Th et U) de référence est prise égale à 22% molaire correspondant à un eutectique dont la température de fusion est de 565°C. La proportion de matière fissile ( $^{233}\text{U}$ ) parmi les noyaux lourds est d'environ 3%. La densité du sel de référence à 630°C est de 4.3 avec un coefficient de dilatation<sup>16</sup> de  $10^{-3}/^{\circ}\text{C}$ . Un tiers des 20 m<sup>3</sup> de sel circule dans les circuits externes au cœur et est donc hors du flux de neutrons.

Une couverture radiale contenant le sel fluorure fertile  $\text{LiF} - (^{232}\text{Th})\text{F}_4$  entoure le cœur afin d'améliorer les capacités de régénération du système. Cette couverture a été étudiée pour capturer environ 80% des neutrons s'échappant du cœur, contribuant ainsi à protéger les structures externes des effets d'irradiation tout en améliorant la régénération.

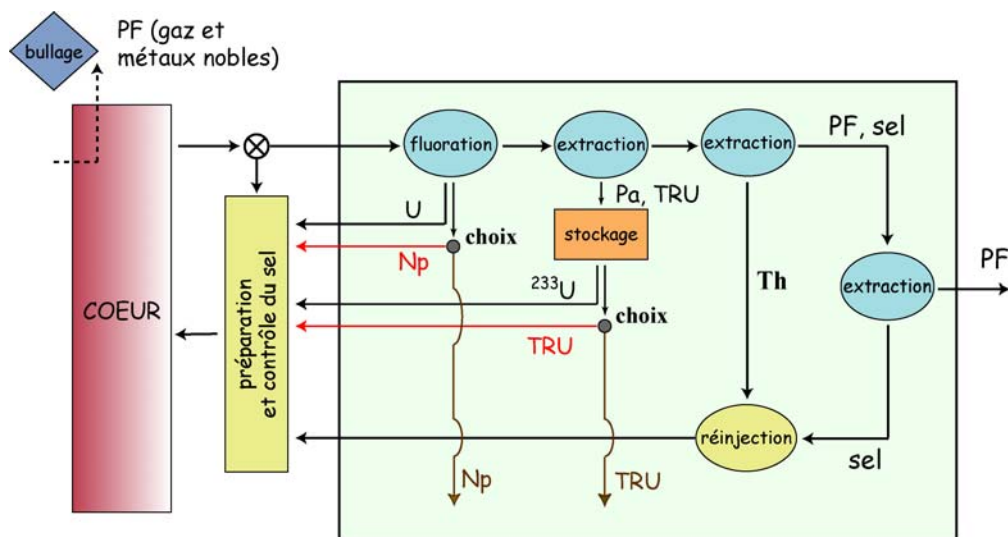


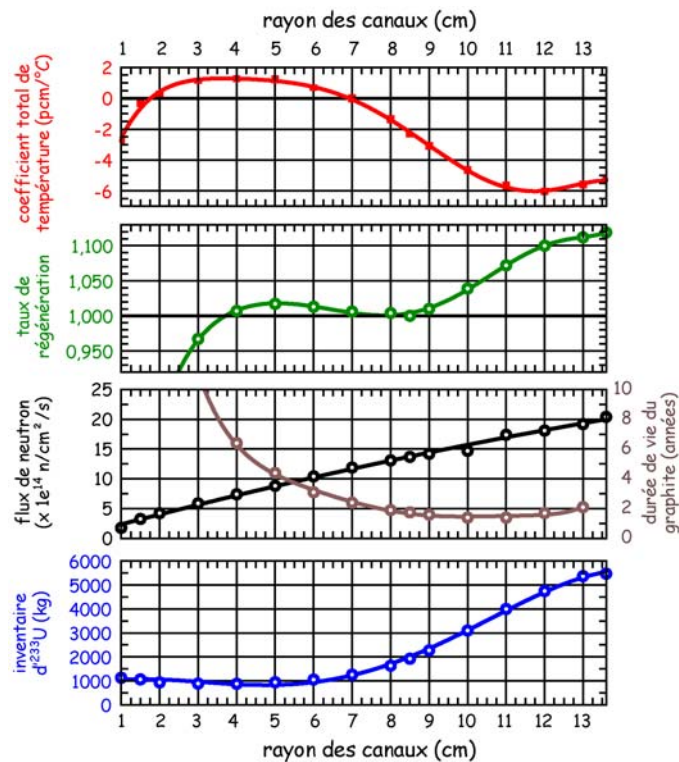
Figure 1 : Principe général du retraitement du sel combustible

Une des caractéristiques importantes des RSF est la possibilité de retraiter le combustible pendant le fonctionnement du réacteur ce qui permet, d'une part, de limiter les captures parasites sur les produits de fission et, d'autre part, d'éviter d'avoir une réserve de réactivité pour assurer la criticité au cours du temps. Le retraitement du sel combustible est représenté sur la figure 1. Les produits de fission gazeux ou nobles (non solubles dans le sel) sont extraits, en un temps caractéristique inférieur à la minute, par un bullage d'hélium placé sur la partie externe du circuit de sel combustible. Des ponctions journalières d'une centaine de litres de sel permettent d'extraire le reste des produits de fission et optionnellement les transuraniens. Bien qu'encore assez mal défini, ce retraitement externe est envisagé en 4 phases pouvant éventuellement être regroupées ou interverties selon les options chimiques choisies. Dans un premier temps, l'uranium du combustible est extrait par fluoration pour être rapidement réinjecté dans le cœur ce qui permet de réduire la quantité de matière fissile dans le cycle du combustible. La deuxième étape permet d'extraire les transuraniens qui seront soit réinjectés dans le cœur soit stockés en attente d'un traitement futur. Dans cette deuxième hypothèse, l' $^{233}\text{U}$  provenant de la décroissance du  $^{233}\text{Pa}$  (27j) sera extrait par fluoration après quelques mois de stockage pour être réintroduit dans le cœur. La troisième étape consiste en l'extraction du thorium ce qui peut permettre, dans la quatrième étape, de retirer les produits de fission sans entraîner trop de thorium. Toutes ces opérations, faisant appel à la pyrochimie des fluorures, sont du même type que celles parfois envisagées pour le

retraitement des combustibles solides de futurs Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR) et donnent donc lieu à de multiples recherches de par le monde.

## II.2 ETUDE EN FONCTION DU RAPPORT DE MODERATION

Le rapport de modulation peut être modifié en changeant le rayon des canaux de graphite. Ceci a pour effet de décaler le spectre neutronique du cœur, qui peut aller d'un spectre très thermalisé à un spectre relativement rapide. La taille du cœur est ajustée pour garder un volume de sel combustible constant de  $20 \text{ m}^3$ . La figure 2 illustre l'influence du rayon des canaux, donc du rapport de modulation, sur le comportement neutronique du TMSR. Afin d'évaluer précisément les performances de chaque configuration de réacteur, nous avons contrôlé le coefficient total de température et la durée de vie du graphite pour les aspects de sûreté, le taux de régénération pour assurer une utilisation durable des ressources, ainsi que l'inventaire fissile initial pour permettre un déploiement rapide de la filière.



**Figure 2 : Influence du rayon des canaux de graphite sur le comportement du TMSR**

Divers comportements neutroniques sont disponibles selon le rapport de modulation choisi. Nous pouvons définir trois types principaux de configuration :

- Un spectre thermique pour des rayons de canaux de l'ordre de 3 cm. Dans ce cas, seul le coefficient de température global n'est pas acceptable, mais une étude avec un réseau d'hexagones de 5 cm de côté au lieu de 15 cm a permis d'obtenir un coefficient de température globalement négatif de l'ordre de  $-1 \text{ pcm}/^\circ\text{C}$ .
- Un spectre épithermique pour des rayons de canaux de l'ordre de 8 à 9 cm qui se rapproche assez des caractéristiques du MSBR. Dans ce cas tous les paramètres de fonctionnement sont bons à l'exception peut-être de la durée de vie du graphite qui n'excède pas les 2 ans pour une fluence maximum de  $2 \cdot 10^{22}$  neutrons de plus de 50 keV et suppose donc un grand débit de graphite à mettre aux déchets, de l'ordre de 15 tonnes par an.
- Un spectre rapide pour des rayons de canaux supérieurs à 11 cm. Dans ce cas seul l'inventaire initial de l'ordre de 5 tonnes semble trop important pour assurer un déploiement mondial satisfaisant<sup>19</sup>. Une configuration particulièrement intéressante apparaît toutefois dans le cas extrême où le graphite n'est plus présent dans le cœur. Cette configuration sans modérateur en cœur est placée sur la figure 2 avec un rayon de canal fictif de 13,6 cm. Elle a l'avantage évident de ne plus demander de gestion du graphite.

Des études ont été menées afin d'améliorer chacune de ces configurations et pour trouver des solutions optimales<sup>12,13</sup>. Nous nous concentrerons dans ce papier spécifiquement sur le cas d'un spectre neutronique rapide, ou

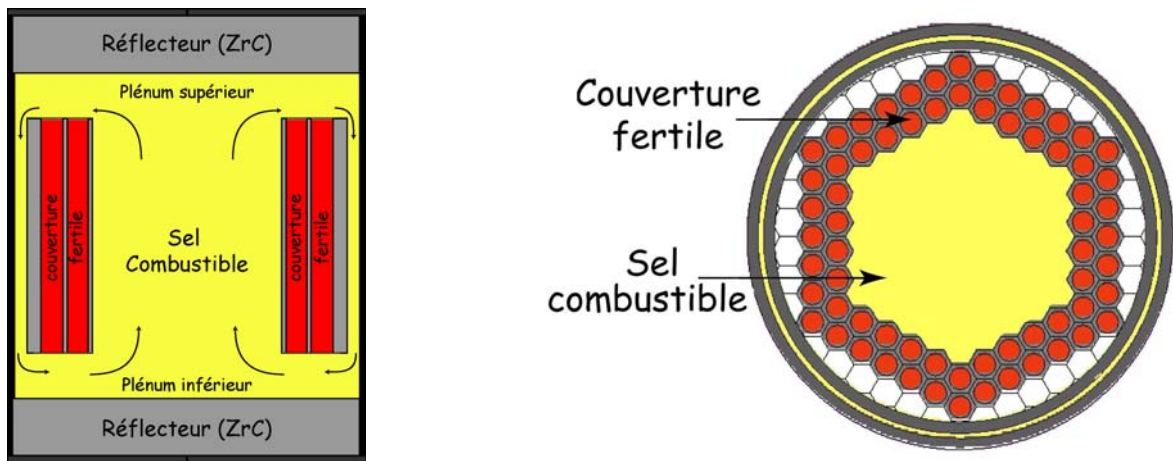
plus précisément sur la configuration sans modérateur en cœur, solution qui apparaît la plus prometteuse et la plus simple.

### III. DESCRIPTION DU TMSR SANS MODERATEUR

Lorsque les canaux hexagonaux sont entièrement remplis de sel combustible, il n'y a plus de graphite modérateur dans le cœur. Le réacteur est alors composé d'un seul gros canal de sel. Dans une telle configuration, le problème d'irradiation du graphite disparaît. La structure en graphite de la couverture étant beaucoup moins irradiée, sa durée de vie est significativement plus longue.

Les coupes verticale et horizontale de cette configuration sont présentées en figure 3. L'unique canal de sel combustible, haut de 2,60 mètres pour un rayon de 1,25 mètres, est entouré de la couverture fertile ainsi que de deux réflecteurs axiaux. Ces réflecteurs sont composés de ZrC afin d'éviter l'utilisation d'un matériau modérateur comme le graphite qui thermaliserait le spectre dans son voisinage et ferait migrer les fissions du centre du cœur vers les réflecteurs.

Cette configuration possède des avantages évidents en terme de simplicité de mise en œuvre, de sûreté du fait de coefficients de température fortement négatifs, et de surgénération. En particulier le fort taux de régénération permet d'envisager des quantités de combustibles à retraiter par jour relativement faible. Par contre, l'inventaire fissile nécessaire au démarrage du réacteur apparaît trop important pour permettre un déploiement de la filière dans de bonnes conditions.



**Figure 3 : Coupes verticale et horizontale de la configuration de TMSR sans modérateur en cœur**

Deux solutions sont en mesure de réduire cette difficulté :

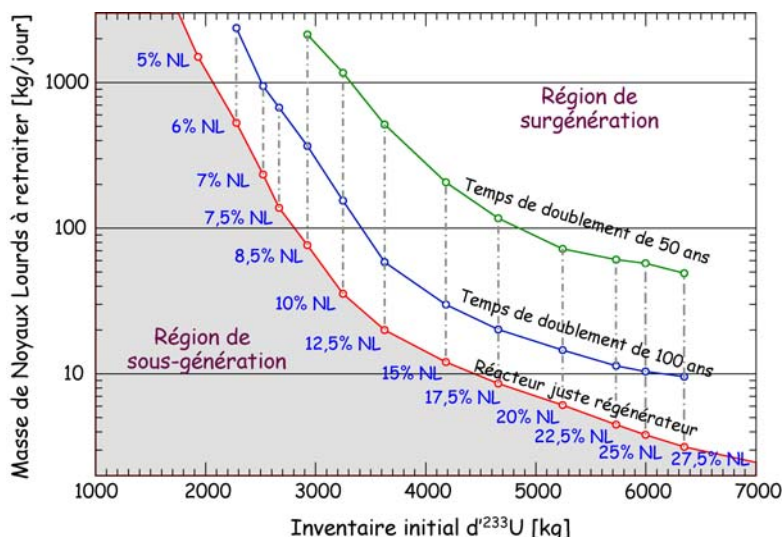
- Il est possible d'augmenter la température de fonctionnement du réacteur pour gagner en rendement thermodynamique et alors diminuer l'inventaire par  $\text{GW}_{\text{el}}$  installé. Cette solution demande des développements importants en ce qui concerne les matériaux mis en œuvre. De fait, nous n'envisagerons pas cette solution dans cet article.
- Il est possible de diminuer la quantité de noyaux lourds dans le sel, mais le volume de sel disponible semble être un minimum pour assurer l'évacuation de chaleur dans les échangeurs. La solution envisagée sera alors de réduire la proportion de noyaux lourds dans le sel. Cette réduction revient à décorrélérer la fonction de combustible remplie par les noyaux lourds de la fonction de caloporteur remplie plus particulièrement par les noyaux légers du sel. Par ailleurs, réduire la proportion de noyaux lourds revient à augmenter la proportion de noyaux légers qui vont thermaliser le spectre neutronique mais aussi augmenter les captures neutroniques parasites.

### IV. OPTIMISATION DE L'INVENTAIRE FISSILE INITIAL

$^{233}\text{U}$  n'étant pas disponible dans la nature, les TMSR devront être démarrés, soit avec de  $^{233}\text{U}$  produit dans d'autres réacteurs, soit avec d'autres matières fissiles qui, de fait, ne pourront être que de l'uranium enrichi ou du plutonium provenant des réacteurs actuels. Il apparaît donc indispensable de réduire autant que possible l'inventaire fissile nécessaire pour démarrer un TMSR. Ceci est réalisé en réduisant la proportion de noyaux lourds dans le sel sans diminuer le volume total de sel. La température de fusion du sel binaire considéré jusqu'à présent étant supérieure à

630°C lorsque la proportion de noyaux lourds décroît, nous avons choisi de revenir au sel ternaire proposé pour le MSBR et contenant du BeF<sub>2</sub>.

Pour chaque proportion de noyaux lourds allant de 5% à 27,5% molaire, nous avons étudié le taux de régénération obtenu en fonction de la quantité de noyaux lourds retraitée par jour. En effet, lors du retraitement, la quantité de produits de fission à retirer ne dépend que de la puissance thermique du réacteur et la difficulté de ce retraitement sera vraisemblablement reliée à la quantité de noyaux lourds en solution avec ces produits de fission. La figure 4 montre la quantité de noyaux lourds transitant par jour dans l'unité de retraitement en fonction de l'inventaire initial nécessaire pour obtenir soit la régénération, soit la production d'un inventaire initial en 100 ans, soit encore la production d'un inventaire initial en 50 ans. Cette représentation permet de visualiser simultanément trois paramètres essentiels dans la définition d'un TMSR sans modérateur en cœur, à savoir le dimensionnement du retraitement, la capacité de déploiement de la filière et la régénération obtenue.



**Figure 4 : Masse de noyaux lourds passant dans l'unité de retraitement par jour en fonction de l'inventaire initial d'<sup>233</sup>U pour obtenir la régénération, un temps de doublement de 100 ans ou un temps de doublement de 50 ans pour des proportions de noyaux lourds allant de 5% à 27,5% molaire.**

La zone grisée à gauche indique la région de sous génération qu'il est préférable d'éviter. L'inventaire initial en <sup>233</sup>U va de 1900 kg pour une proportion de noyaux lourds de 5% molaire dans le sel à 6300 kg pour une proportion de noyaux lourds de 27,5% molaire correspondant au deuxième eutectique de fusion du sel binaire LiF-ThF<sub>4</sub>. Cela met en évidence une forte variation du spectre neutronique de relativement thermalisé à beaucoup plus rapide. Le MSBR, dont la demande de retraitement paraissait bien trop importante, se situait autour de 6700 kg de noyaux lourds dans l'unité de retraitement pour un inventaire initial de 1200 kg.

Notons, toutefois, que les résultats présentés s'appuient sur des bases de données neutroniques évaluées dont la précision n'est pas très bien connue. Par précaution il est préférable de ne pas se placer sur la ligne de régénération c'est pourquoi nous avons choisi, pour la suite de l'article, un point placé sur la courbe du temps de doublement de 100 ans. Par ailleurs, des études de déploiement mondial de la filière indiquent qu'un inventaire initial d'<sup>233</sup>U de 3 tonnes serait acceptable ce qui nous amène à choisir une proportion de noyaux lourds dans le sel de 8,5%.

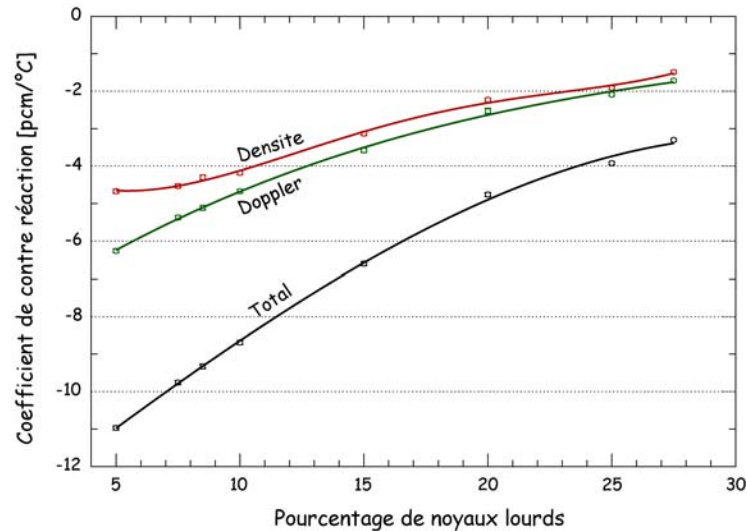
Nous avons, par ailleurs, réalisé une étude des coefficients de contre-réaction en fonction de la température du sel combustible. Le coefficient total de contre-réaction, ou coefficient total de température, peut être vu comme la somme de deux sous coefficients, comme indiqué ci-après :

$$\left. \frac{dk}{dT} \right)_{total} = \left. \frac{dk}{dT} \right)_{dilatation\_sel} + \left. \frac{dk}{dT} \right)_{échauffement\_sel}$$

Le coefficient d'échauffement du sel comprend essentiellement l'effet d'élargissement Doppler des résonances des sections efficaces de capture ou de fission des noyaux présents dans le sel, alors que le coefficient de dilatation du sel ne fait intervenir que le changement de densité du sel lors de son échauffement. Ce dernier coefficient peut aussi être considéré comme un coefficient de vide. Le coefficient de dilatation du sel étant de 10<sup>-3</sup>/°C, 1 pcm/°C équivaut à 10 pcm par % de vide.

La figure 5 montre le coefficient de contre-réaction total ainsi que les contributions de l'échauffement du sel et de sa dilatation pour les différentes proportions de noyaux lourds et pour un retraitement assurant juste la régénération. Quelle que soit la proportion de noyaux lourds, ces coefficients de contre-réaction sont largement négatifs ce qui assure un haut niveau de sûreté déterministe dans de tels RSF<sup>18</sup>. Du point de vue de la sûreté, les faibles proportions de noyaux lourds sont grandement favorisées, ce qui conforte notre choix d'une proportion de noyaux lourds de 8,5% molaire dans le sel.

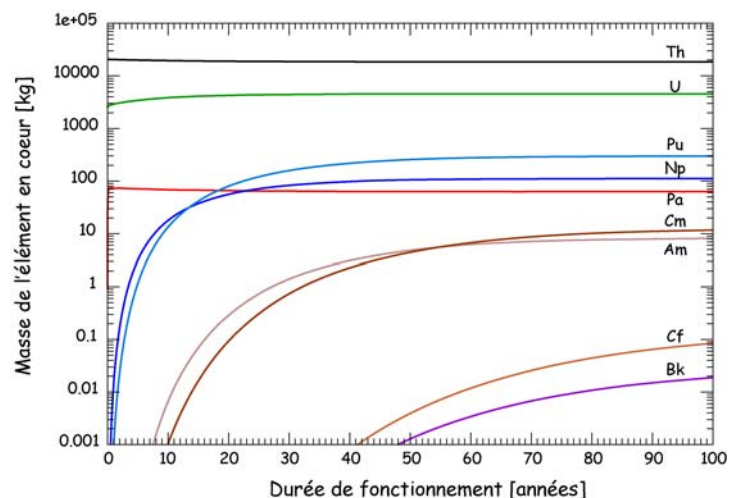
Les incertitudes entachant l'estimation de ces coefficients proviennent d'erreurs statistiques, précisément évaluées, mais aussi d'erreurs systématiques provenant de diverses sources telles que les valeurs des sections efficaces évaluées. Ces incertitudes systématiques ne sont pas précisément connues mais sont assez importantes, de l'ordre de 1 à 2 pcm/ °C. Malgré cela, les valeurs obtenues permettent d'assurer que les coefficients de contre-réaction seront bien négatifs.



**Figure 5 : Coefficients de contre réaction en fonction de la proportion de noyaux lourds dans le sel pour un débit de retraitement proche de la régénération.**

En conséquence, nous considérerons pour toute la suite de cet article un sel fluoré contenant 8,5% de noyaux lourds, 80% de lithium et 11,5% de béryllium pour assurer un point de fusion suffisamment bas tout en gardant une solubilité des éléments de valence trois suffisante pour permettre de démarrer le réacteur avec du plutonium, ce qui sera étudié dans le chapitre VI. Des études nous ont permis de constater que la proportion de béryllium n'a pas d'influence notable sur le comportement neutronique du réacteur ce qui permet de choisir sa valeur uniquement sur des critères de thermique et d'hydraulique. Par ailleurs, nous considérerons un retraitement où tous les actinides sont recyclés en permanence pour assurer une auto incinération de ceux-ci.

## V. EVOLUTION DU COMBUSTIBLE DANS LE TMSR SELECTIONNE



**Figure 6 : Evolution des compositions d'actinides dans le cœur du TMSR**

Dans le cas où de  $^{233}\text{U}$  serait disponible pour démarrer un tel TMSR, sa composition molaire initiale serait de 80% de Li, 11,5% de Be, 7,55% de Th et 0,95% d'U. Au cours du fonctionnement du réacteur, les autres actinides vont apparaître et s'équilibrer en quantité avec des temps plus ou moins longs selon la charge de l'élément. La figure 6 montre l'évolution de ces quantités d'actinides dans le cœur sur une période de 100 ans et les équilibres atteints.

Le tableau 1 indique les compositions atteintes après 100 ans d'évolution du cœur. Malgré un spectre neutronique relativement thermalisé du fait de la faible proportion de noyaux lourds dans le sel, les quantités de trans-plutoniens sont peu importantes et n'entraînent pas de difficulté majeure dans la gestion du sel. En particulier, le retraitement étant prévu dans ce cas en 87 jours, les quantités présentes dans l'unité de retraitement sont d'environ deux ordres de grandeur plus faibles avec 270 kg de noyaux lourds dont 212 kg de Th, 52 kg d'U contenant 37 kg de fissiles et 4,9 kg de transuraniens. Par ailleurs, l'équilibre n'étant atteint qu'après plusieurs dizaines d'années pour les Am-Cm et plus de 100 ans pour les éléments plus lourds, les éventuels difficultés liées à leur présence dans l'unité de retraitement n'apparaîtraient qu'après un long temps de fonctionnement ce qui laisserait le temps pour avoir un retour d'expérience suffisant pour assurer leur gestion.

Noyau	Masse	Noyau	Masse	Noyau	Masse	Noyau	Masse
$^{228}\text{Th}$	61,7 g	$^{236}\text{Np}$	3,21 g	$^{240}\text{Am}$	60,3 $\mu\text{g}$	$^{247}\text{Bk}$	48,6 $\mu\text{g}$
$^{229}\text{Th}$	53,4 g	$^{237}\text{Np}$	111 kg	$^{241}\text{Am}$	2,87 kg	$^{248}\text{Bk}$	1,01 mg
$^{230}\text{Th}$	236 g	$^{238}\text{Np}$	258 g	$^{242}\text{Am}$	1,96 g	$^{249}\text{Bk}$	18,8 g
$^{231}\text{Th}$	4,61 g	$^{239}\text{Np}$	1,35 g	$^{242\text{m}1}\text{Am}$	112 g	$^{249}\text{Cf}$	37,8 g
$^{232}\text{Th}$	18440 kg	$^{236}\text{Pu}$	85,5 mg	$^{243}\text{Am}$	5,18 kg	$^{250}\text{Cf}$	29,1 g
$^{231}\text{Pa}$	2,68 kg	$^{237}\text{Pu}$	430 mg	$^{244}\text{Am}$	2,26 g	$^{251}\text{Cf}$	15,3 g
$^{232}\text{Pa}$	5,69 g	$^{238}\text{Pu}$	156 kg	$^{242}\text{Cm}$	370 g	$^{252}\text{Cf}$	2,44 g
$^{233}\text{Pa}$	60,5 kg	$^{239}\text{Pu}$	60,4 kg	$^{243}\text{Cm}$	77,2 g	$^{253}\text{Cf}$	7,76 mg
$^{232}\text{U}$	2,98 kg	$^{240}\text{Pu}$	49,7 kg	$^{244}\text{Cm}$	6,36 kg	$^{254}\text{Cf}$	166 $\mu\text{g}$
$^{233}\text{U}$	2877 kg	$^{241}\text{Pu}$	17,9 kg	$^{245}\text{Cm}$	2,49 kg	$^{253}\text{Es}$	8,73 mg
$^{234}\text{U}$	942 kg	$^{242}\text{Pu}$	14,5 kg	$^{246}\text{Cm}$	1,64 kg	$^{254}\text{Es}$	1,91 mg
$^{235}\text{U}$	34,7 kg	$^{244}\text{Pu}$	2,88 mg	$^{247}\text{Cm}$	550 g		
$^{236}\text{U}$	38,1 kg			$^{248}\text{Cm}$	202 g		
$^{237}\text{U}$	852 g			$^{250}\text{Cm}$	28,3 $\mu\text{g}$		
$^{238}\text{U}$	1,25 kg						

Tableau 1 : Compositions isotopiques des actinides dans le cœur après 100 ans d'évolution

Les produits de fission qui apparaissent dans le cœur atteignent rapidement un équilibre à 102 kg du fait du retraitement en continu du sel combustible. La figure 7 montre, à gauche, la composition à l'équilibre de ces produits de fission en kg et, à droite, leur taux de capture correspondant en grammes par jour.

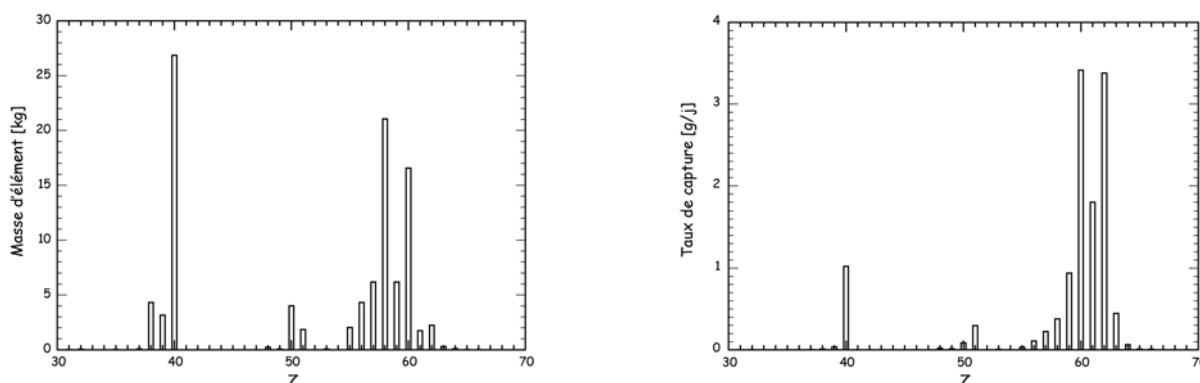


Figure 7 : Composition et taux de capture des produits de fission à l'équilibre

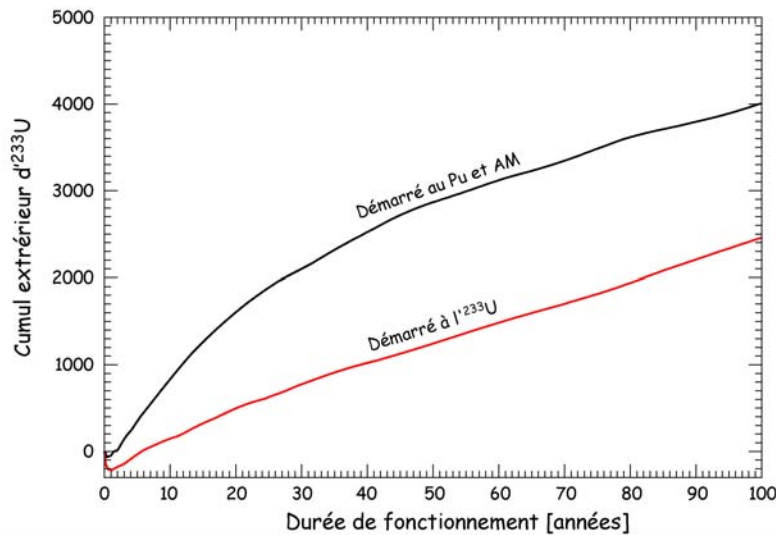
## VI. ETUDE DU DEMARRAGE D'UN TMSR AU PLUTONIUM

Dans le cas où  $^{233}\text{U}$  ne serait pas disponible, il faudrait utiliser un autre fissile pour démarrer la filière. Les deux seules possibilités sont l'uranium enrichi et le plutonium provenant des réacteurs actuels. Nous n'envisagerons ici que le cas du plutonium issu des REP.

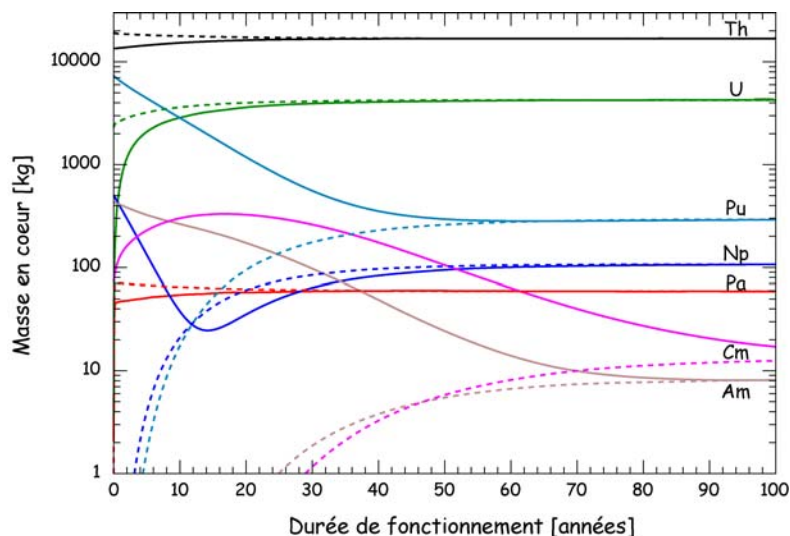
Noyau	Proportion dans le sel	Masse [kg]	Noyau	Proportion dans le sel	Masse [kg]
<sup>232</sup> Th	0,0537295	14753	<sup>241</sup> Am	0 0.0010317	294
<sup>237</sup> Np	0,0019162	537,5	<sup>243</sup> Am	0 0.0005803	167
<sup>238</sup> Pu	0.0008456	238	<sup>243</sup> Cm	0 0.0000019	0,546
<sup>239</sup> Pu	0.0144252	4080	<sup>244</sup> Cm	0 0.0002465	71
<sup>240</sup> Pu	0.0067300	1912	<sup>245</sup> Cm	0 0.0000228	6,6
<sup>241</sup> Pu	0.0033582	958	<sup>246</sup> Cm	0 0.0000032	0,93
<sup>242</sup> Pu	0.0021088	604			

**Tableau 2 : Composition dans le sel du combustible utilisé pour démarrer un TMSR au plutonium**

Nous considérerons le TMSR précédent mais démarré avec 5,37% de Th, 0,19% de Np, 2,75% de Pu, 0,16% d'Am et 0,03% de Cm correspondant à la sortie d'un REP Uox avec un taux de combustion de 60 GWj/tonne et après 5 ans de refroidissement. Plus précisément, la composition exacte du combustible utilisée est donnée dans le tableau 2. La criticité est atteinte avec 7,8 tonnes de plutonium ce qui est plus que pour un RNR en cycle U-Pu. Il faut cependant remarquer qu'un seul chargement est nécessaire à un RSF pour fonctionner alors qu'un RNR en réclame deux pour assurer, en parallèle, le retraitement d'un cœur pendant qu'un autre fonctionne. Par ailleurs, la présence du plutonium et des actinides mineurs favorise la surgénération du TMSR pendant plus de 20 ans, comme on peut le constater sur la figure 8, ce qui permet de démarrer rapidement de nouveaux TMSR à l'<sup>233</sup>U cette fois-ci.



**Figure 8 : Comparaison du cumul d'<sup>233</sup>U à l'extérieur du réacteur au cours du temps pour un TMSR démarré à l'<sup>233</sup>U et un TMSR démarré au Pu et actinides mineurs (AM)**



**Figure 9 : Comparaison de l'évolution des actinides dans le cœur pour un TMSR démarré à l'<sup>233</sup>U, en pointillés, et un TMSR démarré au Pu et AM, en traits pleins**

La présence de transuraniens au démarrage du réacteur va forcément augmenter les quantité d'actinides mineurs présents dans le sel, mais à terme la composition du sel sera identique à celle d'un TMSR démarré à l' $^{233}\text{U}$ .

La figure 9 montre les évolutions comparées des deux types de réacteur. Si les Th, Pa, U et Np retrouvent rapidement leur proportion d'équilibre, il faut plusieurs dizaines d'années pour incinérer le plutonium introduit et une centaine d'années pour les Am et Cm. Le Cf, quant à lui, est encore loin de l'équilibre après être passé par un maximum, non représenté sur la figure 9, de 2,7 kg vers 50 ans dont 90 g de  $^{252}\text{Cf}$ . Par ailleurs, le Cm passe par un maximum de 350 kg vers 15 ans dont 225 kg de  $^{244}\text{Cm}$ . Il faut cependant remarquer que les erreurs statistiques et systématiques se propagent tout au long de l'évolution vers les noyaux très lourds et il est probable que les valeurs indiquées pour les Cm soient peu précises, celles pour les Cf étant au mieux à un facteurs 2 près.

Il est probable que la présence de ces noyaux fortement radioactifs ne soit pas rédhibitoire pour le fonctionnement du réacteur et de son unité de retraitement. En effet, contrairement à un réacteur à combustible solide, il n'y a pas de nécessité de refabriquer le combustible et les différentes opérations de manutention du sel peuvent être automatisées derrière des protections efficaces.

## CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Nous avons montré qu'il existe une très large gamme de configurations de réacteurs à sel fondu dont certaines apparaissent plus satisfaisantes que celle du MSBR étudié dans les années 1960-1980. En particulier le TMSR sans modérateur dans le cœur dispose de coefficients de température largement négatifs tout en assurant une forte régénération. Ceci permet de résoudre les problèmes liés à la tenue du graphite sous irradiation et d'avoir accès à un excellent niveau de sûreté déterministe.

La possibilité d'agir sur la composition du sel a permis d'obtenir des inventaires initiaux compatibles avec un déploiement mondial intensif de la filière. Nous avons alors étudié un TMSR particulier contenant 8,5% molaire de noyaux lourds, 11,5% de béryllium et 80% de lithium. Ce réacteur est intrinsèquement sûr grâce à un coefficient de température de  $-10\text{ pcm}/^\circ\text{C}$ . Il reste surgénérateur en ne retraitant que 750 kg de sel par jour, ne contenant que 270 kg de noyaux lourds dont 212 kg de Th, 52 kg d'U et 4.9 kg de transuraniens.

Nous avons étudié la possibilité de démarrer un tel réacteur avec du Pu et actinides mineurs issus de REP. Dans ce cas, les concentrations d'actinides mineurs augmentent sans pour autant devenir inacceptables. Les limitations semblent être le plutonium qui revient à l'équilibre du TMSR correspondant en 50 ans et quelques éléments comme le  $^{244}\text{Cm}$  ou le  $^{252}\text{Cf}$  qui passent par des maxima compatibles avec la gestion d'un combustible liquide.

Tous ces résultats particulièrement encourageants ont totalement renouvelé la vision que l'on pouvait avoir des réacteurs à sels fondus et ont incité le CNRS à mettre en place un Programme Commun de Recherche (PCR) sur les RSF qui regroupe ses départements de Physique, Chimie et Sciences de l'Ingénieur. Dans ce cadre, outre les simulations numériques dont celles présentées dans ce papier, des recherches ont été engagées sur l'ensemble des points clés à résoudre pour mener à la définition d'un TMSR de démonstration. Ces recherches portent aussi bien sur des calculs ab initio des caractéristiques physico-chimiques des sels que sur des mesures expérimentales, microscopiques et macroscopiques, de ces caractéristiques. En particulier, par des mesures RMN et EXAFS, il est possible de comprendre l'environnement structural dans le sel et donc de valider des simulations numériques ab initio de cet environnement. Ces données microscopiques servent alors à consolider des modèles permettant d'accéder aux diagrammes de phases complexes du sel. Enfin, des expériences en pyrochimie sur l'extraction des produits de fission présents dans le sel viennent valider et concrétiser tout cet ensemble de connaissances théoriques. Par ailleurs, les études sur la tenue des matériaux et l'hydrodynamique des milieux salins éventuellement multiphasés (transport de particules et de bulles) ont menés à une demande de financement d'une boucle de sels fondus à haute température en convection forcée. Cette installation devrait nous permettre de prouver la possibilité de contrôler les propriétés physico-chimiques du sel et en particulier le red-ox et les aspects de corrosion.

## REFERENCES

1. R.C. Briant, A.M. Weinberg, "Aircraft Nuclear Propulsion Reactor", Nuclear Science and Engineering, vol. 2, 795-853 (1957).
2. P.N. Haubenreich, J.R. Engel, "Experience with the Molten Salt Reactor Experiment", Nuclear Applications and Technology, vol. 8, 107-117 (1970).
3. E.S. Bettis, R.C. Robertson, "The design and performance features of a single-fluid molten salt breeder reactor", Nuclear Applications and Technology, vol. 8, 190-207 (1970).

4. M.E. Whatley et al., "Engineering development of the MSBR fuel recycle", *Nuclear Applications and Technology*, vol. 8, 170-178 (1970).
5. K. Furukawa et al., "Thorium Molten-Salt Nuclear Energy Synergetics", *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 27, No. 12, 1157-1178 (1990).
6. C.D. Bowman, "Once-Through Thermal-Spectrum Accelerator-Driven System for LWR Waste Destruction Without Reprocessing: Tier-1 Description", ADNA/98-04 (1998).
7. V. Berthou, "Le concept TASSE (Thorium ADS with simplified fuel cycle for long term energy production)", Thèse de doctorat (Université d'Evry – Val d'Essonne, 2000).
8. D. Lecarpentier, "Le concept AMSTER, aspects physiques et sûreté", Thèse de doctorat (Conservatoire National des Arts et Métiers, 2001).
9. O. Méplan, "Technical report on Bowman's reactor", rapport interne ISN (1999).
10. A. Nuttin, "Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique", Thèse de doctorat (Université Joseph Fourier – Grenoble-I) (2002).
11. A. Nuttin et al, "Potential of Thorium Molten Salt Reactors", *Prog. in Nucl. En.*, vol 46, p. 77-99 (2005).
12. L. Mathieu, "Cycle Thorium et Réacteurs à Sel Fondu : Exploration du champ des Paramètres et des Contraintes définissant le Thorium Molten Salt Reactor", thèse de doctorat, (Institut National Polytechnique de Grenoble) (2005).
13. L. Mathieu et al, "Proposition for a Very Simple Thorium Molten Salt Reactor", *Global Conference*, Tsukuba, Japan (2005).
14. L. Mathieu, D. Heuer et al, "The Thorium Molten Salt Reactor: Moving on from the MSBR", *Prog in Nucl En* vol 48, p 664-679 (2006).
15. J.F.Briesmeister, "MCNP4B-A General Monte Carlo N Particle Transport Code", Los Alamos Lab. report LA-12625-M (1997).
16. I. Victor, E. Walle et al, "Density of Molten Salt Reactor Fuel Salts", *Nureth Conference*, Avignon, France (2005).
17. K. Furukawa et al., "New Primary Energy Source by Thorium Molten-Salt Reactor Technology", *Electrochemistry* Vol. 73 No. 8 552-563 (2005).
18. E. Merle-Lucotte, D. Heuer, L. Mathieu, C. Le Brun, "Molten Salt Reactor: Deterministic Safety Evaluation", *European Nuclear Conference*, Versailles, France (2005).
19. E. Merle-Lucotte, D. Heuer, C. Le Brun and J.-M. Loiseaux, "Scenarios for a Worldwide Deployment of Nuclear Power ", submitted to INJG2E (2006).