

---

**UPMC – M2 Ingénierie pour le Nucléaire**

# **Neutronique**

## **09. – Evolution du Combustible**

---

Laurent Le Guillou  
UPMC / LPNHE

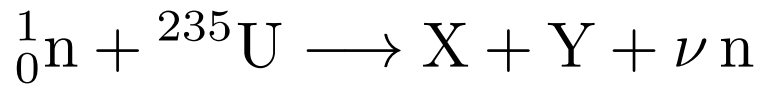
llg@lpnhe.in2p3.fr

# Plan

---

- Introduction
- Produits de fission
- Empoisonnement par le Xénon-135
- Empoisonnement par le Samarium-149
- Evolution des noyaux lourds
- Puissance résiduelle

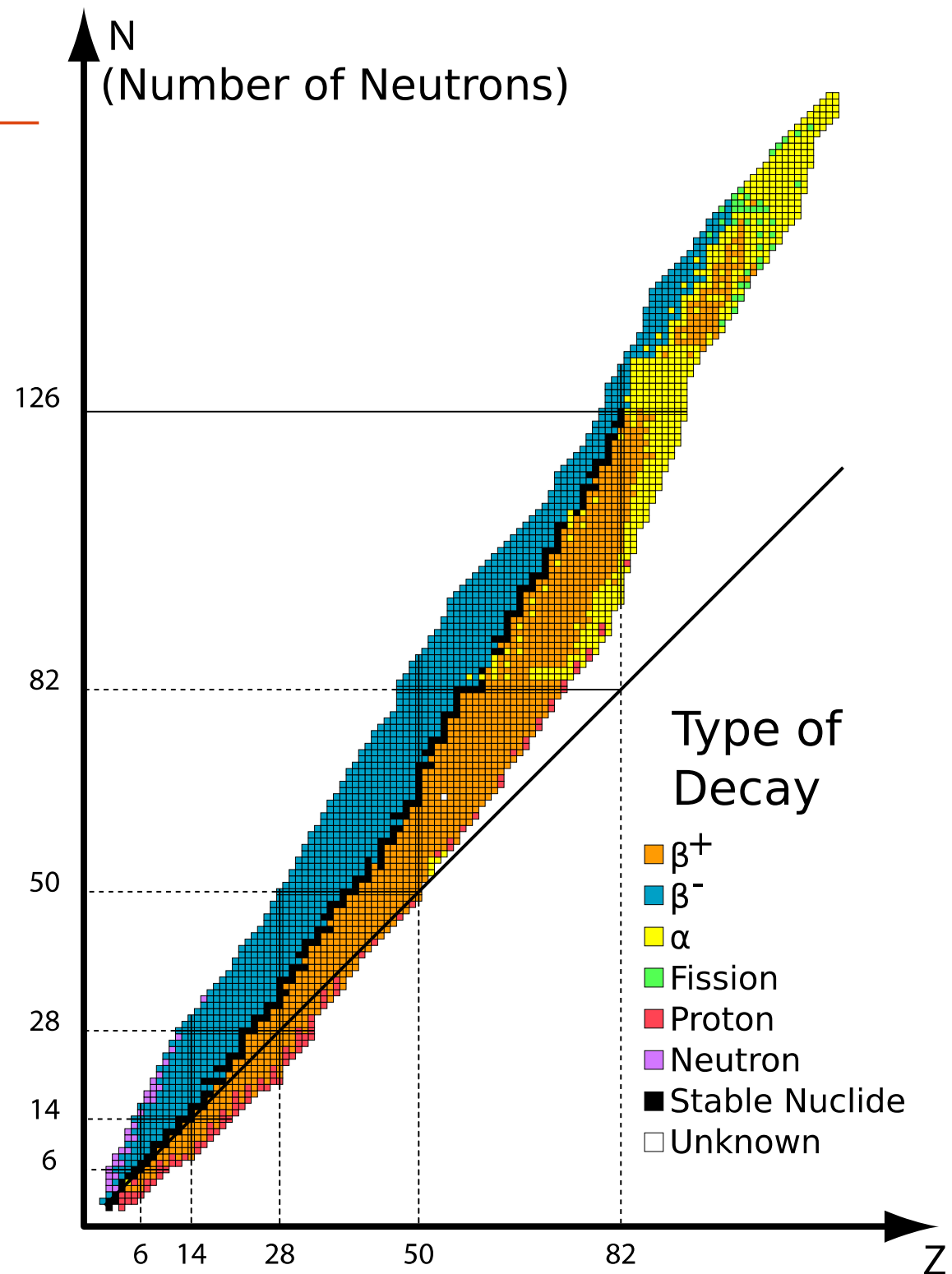
# Produits de fission



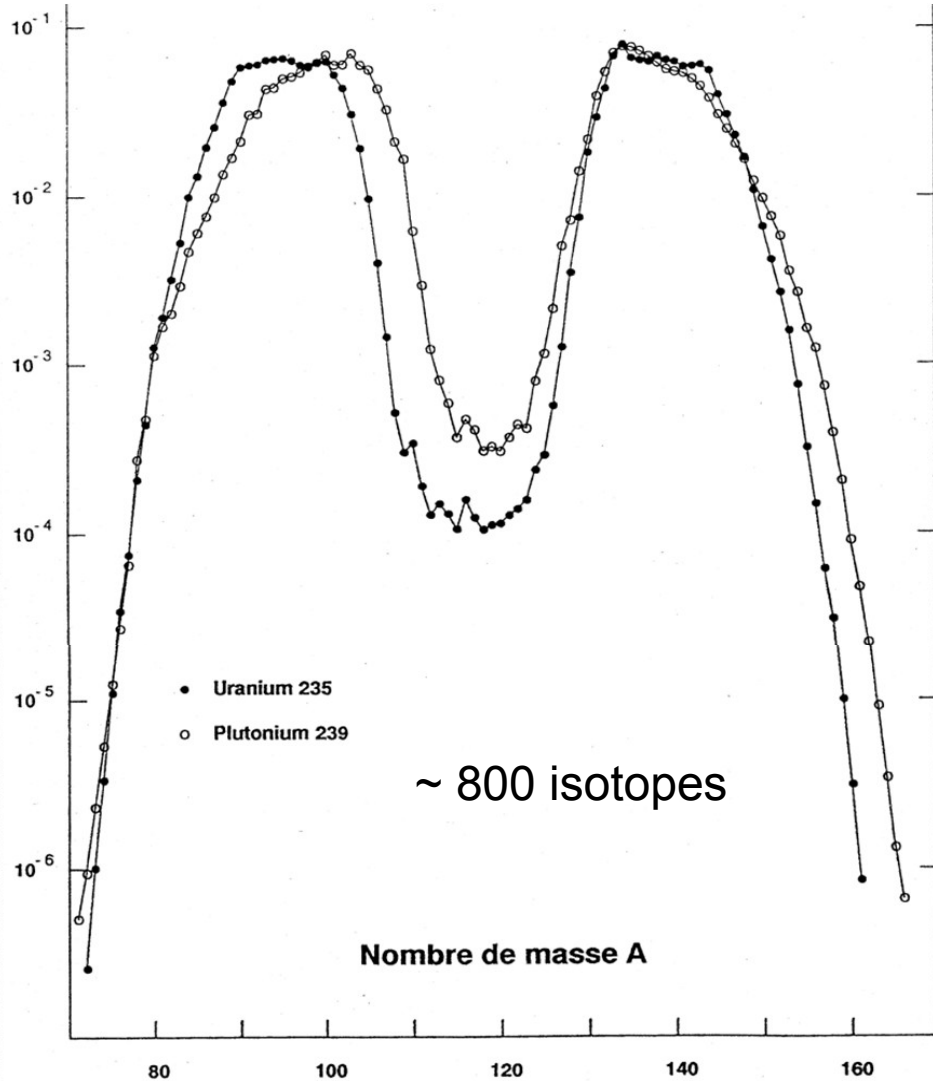
- Les noyaux lourds ont une plus grande proportion de neutrons
- Les fragments de fission sont donc trop riches en neutrons : émetteurs  $\beta^-$
- Taux de production :  $\gamma_i$

$$\sum_{\text{isotope } i} \gamma_i = 2$$

Noyaux fils parfois émetteurs de neutrons :  
→ neutrons « retardés »

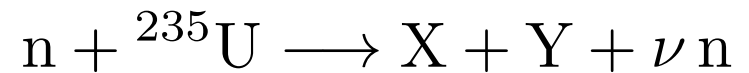
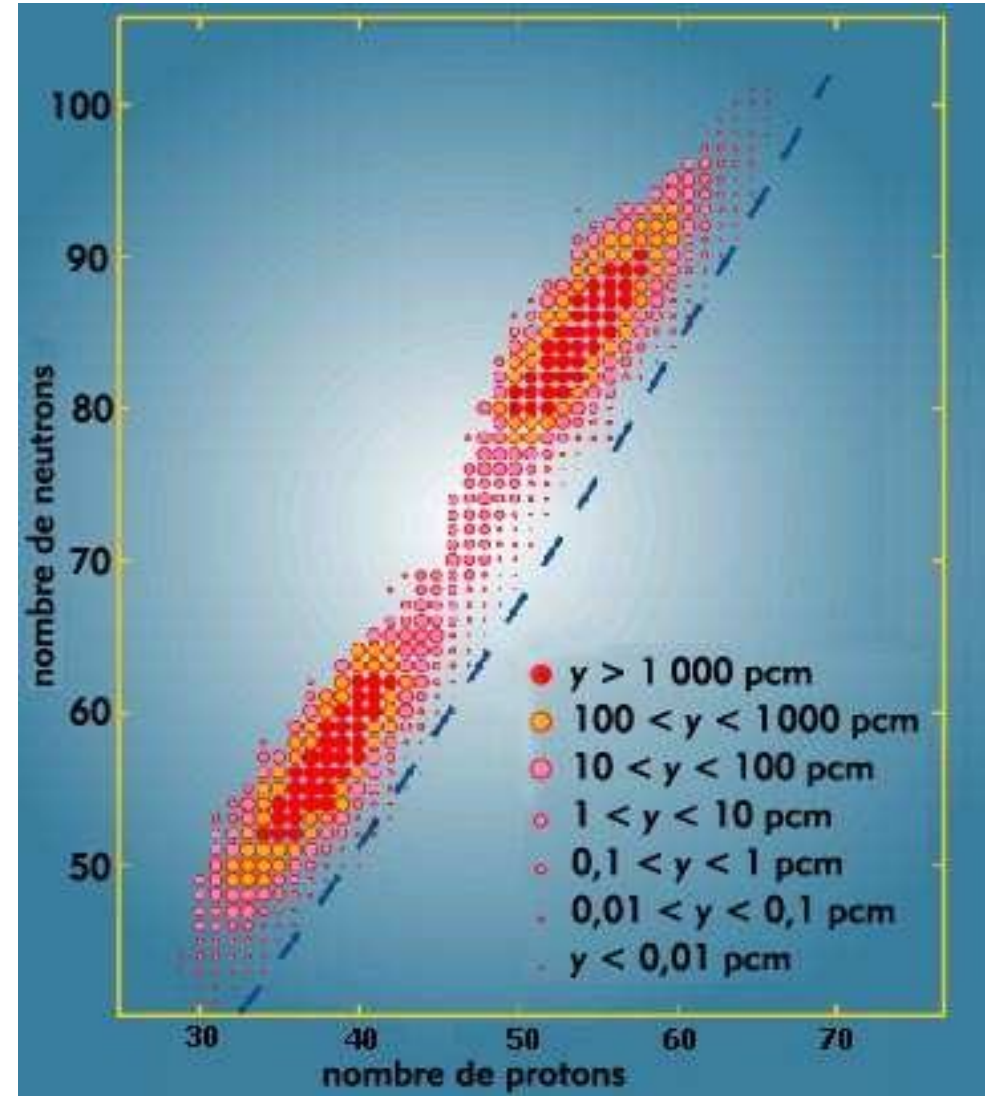


# Produits de fission



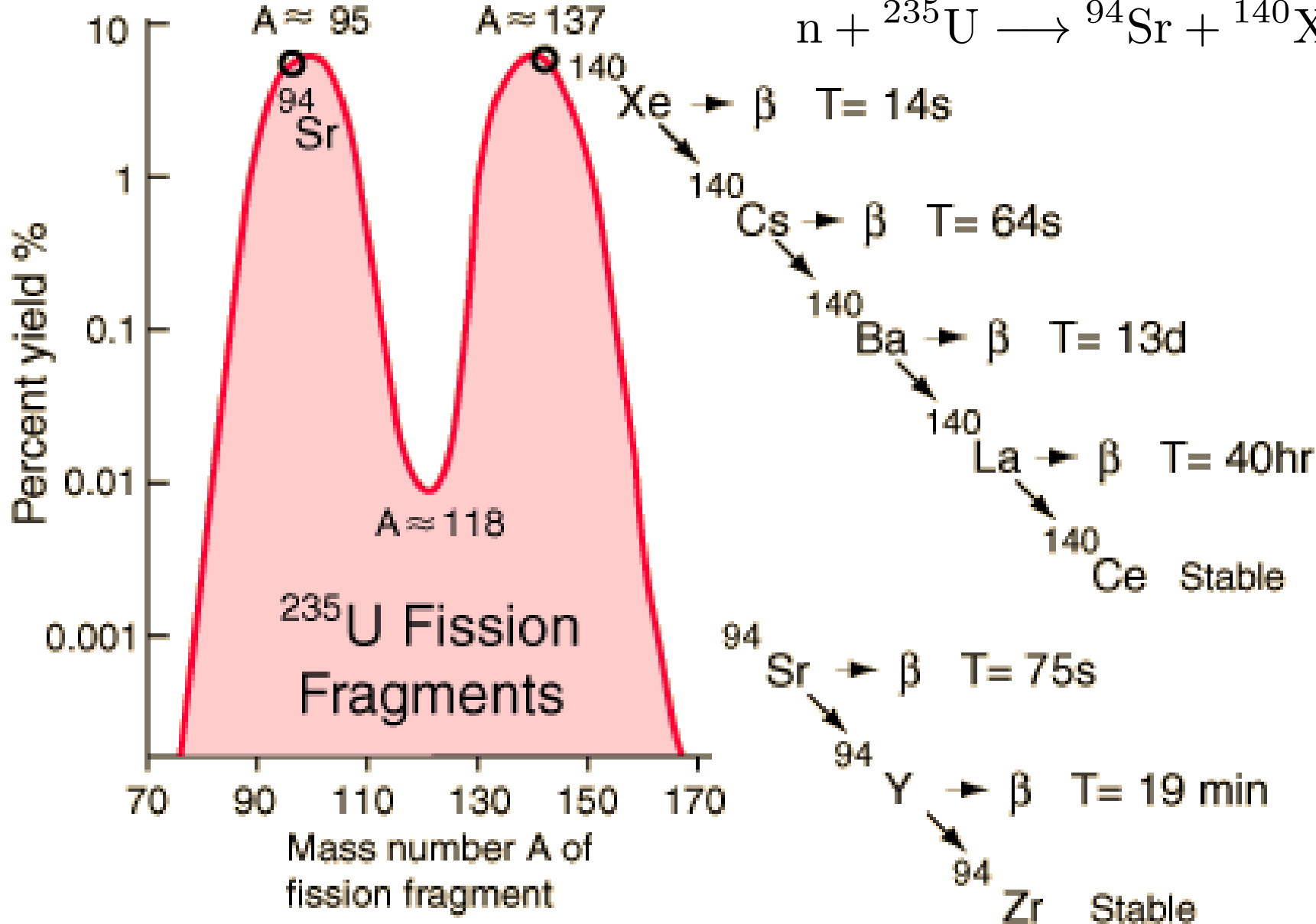
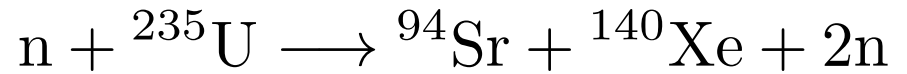
Uranium 235 ; Plutonium 239

Rendements pour une fission induite par neutron thermique



# Produits de fission : désintégrations

Les fragments de fission ont trop de neutrons  $\rightarrow$  désintégration  $\beta^-$



# Produits de fission : équations d'évolution

---

- Equation d'évolution pour chaque isotope  $i$  :
  - Production par **fission** : rendement  $\gamma_i$  ou  $Y_i$  (« Yield ») ;
  - **Décroissance radioactive** du noyau  $j$  ;
  - **Capture d'un neutron** par le noyau  $k$  ;
  - Disparition par **décroissance radioactive** ;
  - Disparition par **capture neutronique**.

$$\frac{dN_i}{dt} = \gamma_i \Sigma_f \phi + \lambda_j N_j + \sigma_{a,k} N_k \phi - \lambda_i N_i - \sigma_{a,i} N_i \phi$$

→ Equations différentielles couplées : « équations de Bateman »

Sections efficaces **moyennées** sur le spectre des neutrons : éventuellement, étude par « groupe » d'énergie.

12 premiers isotopes resp. de 75 % ; 25 premiers isotopes responsables de 90 % de l'empoisonnement.

# Produits de fission : effets sur le réacteur

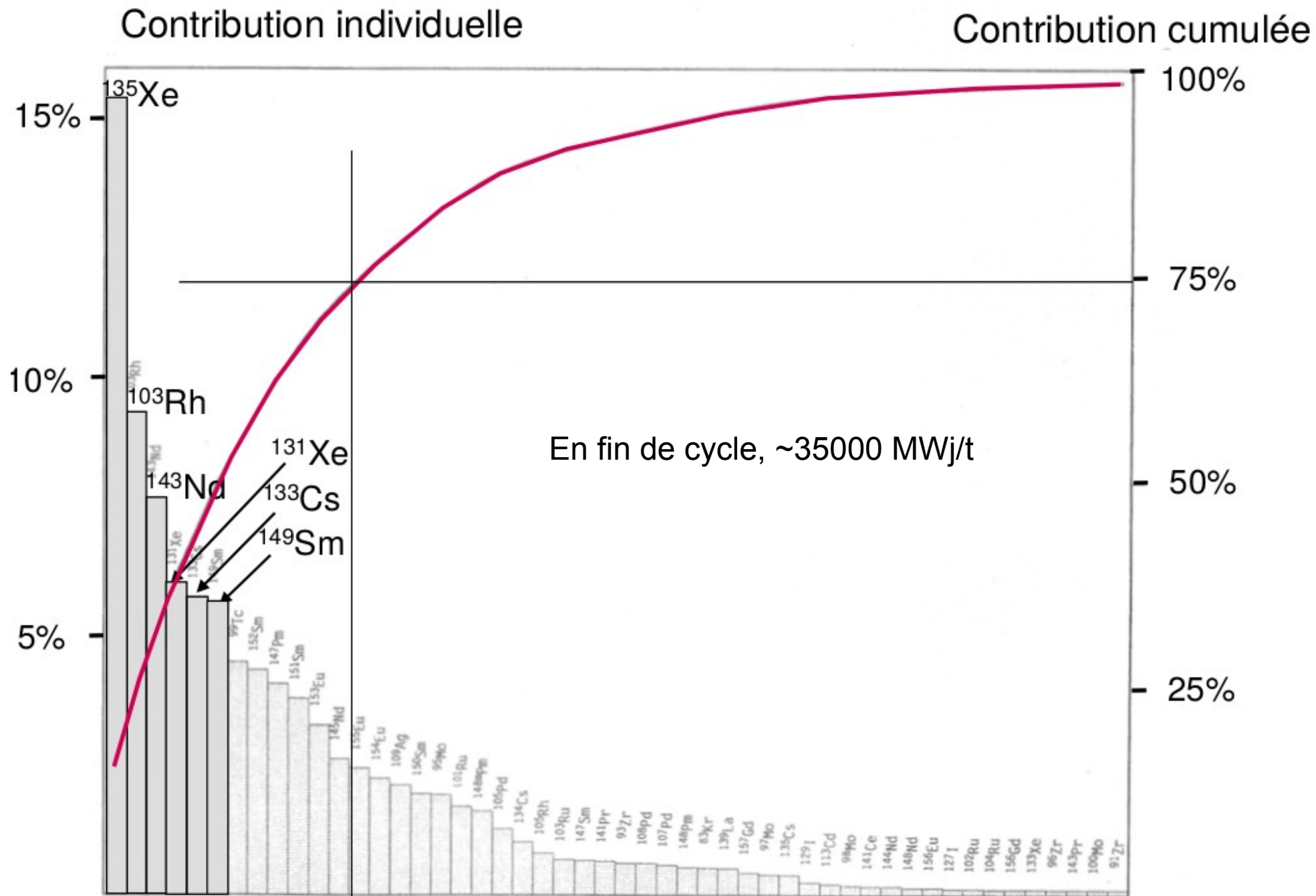
---

- L'absorption des neutrons par les produits de fission diminue la réactivité.
- « **Empoisonnement** » :

$$\Pi = \left| \frac{\partial \eta}{\eta} \right| = \frac{\partial \Sigma_{a,c}}{\Sigma_{a,c}} = \frac{\Sigma_{a,PF}}{\Sigma_{a,c}} \quad (k_{\infty} = \epsilon \eta p f)$$

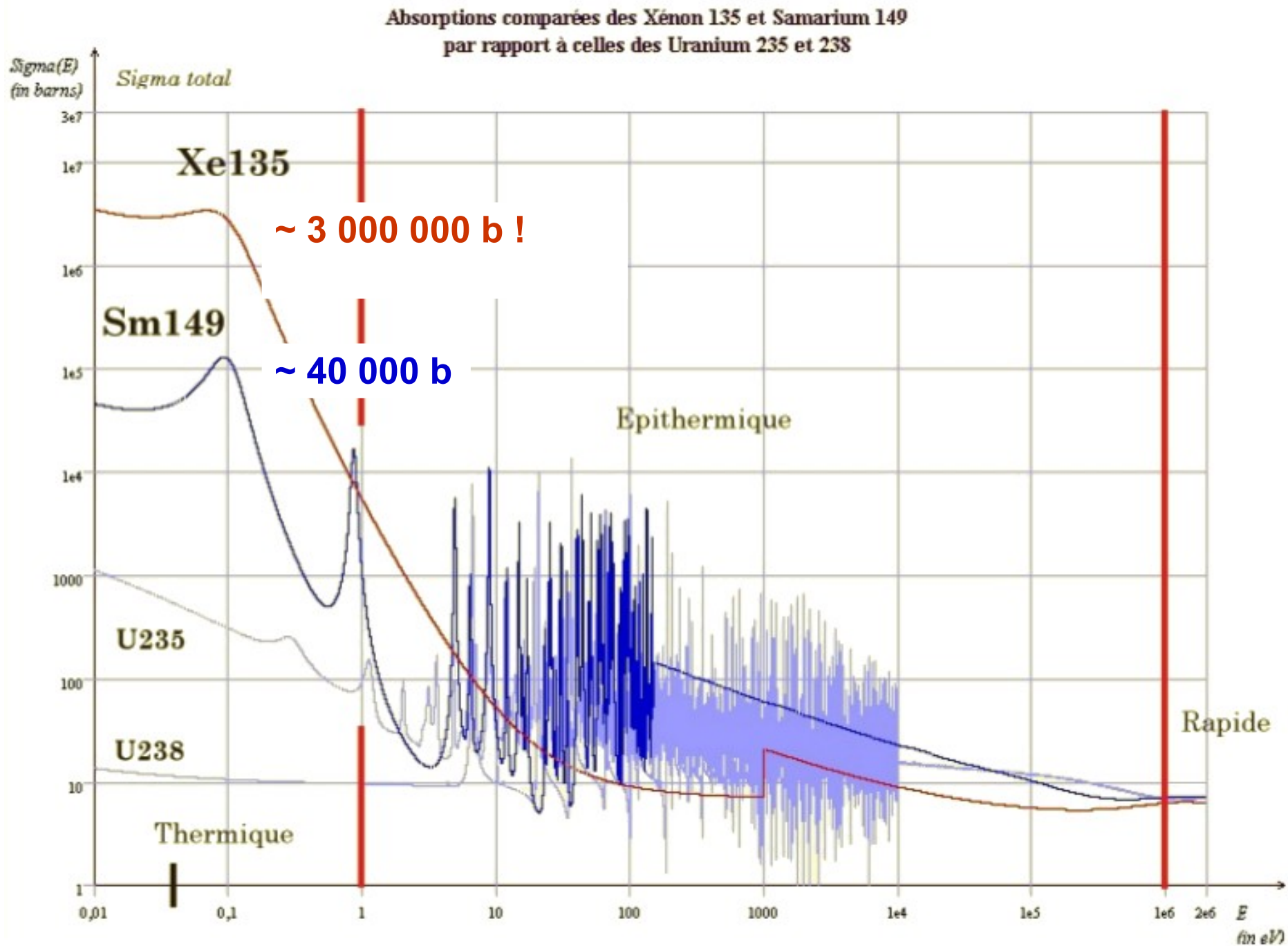
- Ordre de grandeur :
  - REP :
    - $\Delta\rho \sim -3000$  pcm qqes jours après le démarrage ;
    - $\Delta\rho \sim -15000$  à  $-20000$  pcm au rejet du combustible utilisé.

# Produits de fission : empoisonnement





# Produits de fission : empoisonnement



# Effet Xénon : chaîne du Xénon-135

Equations d'évolution :

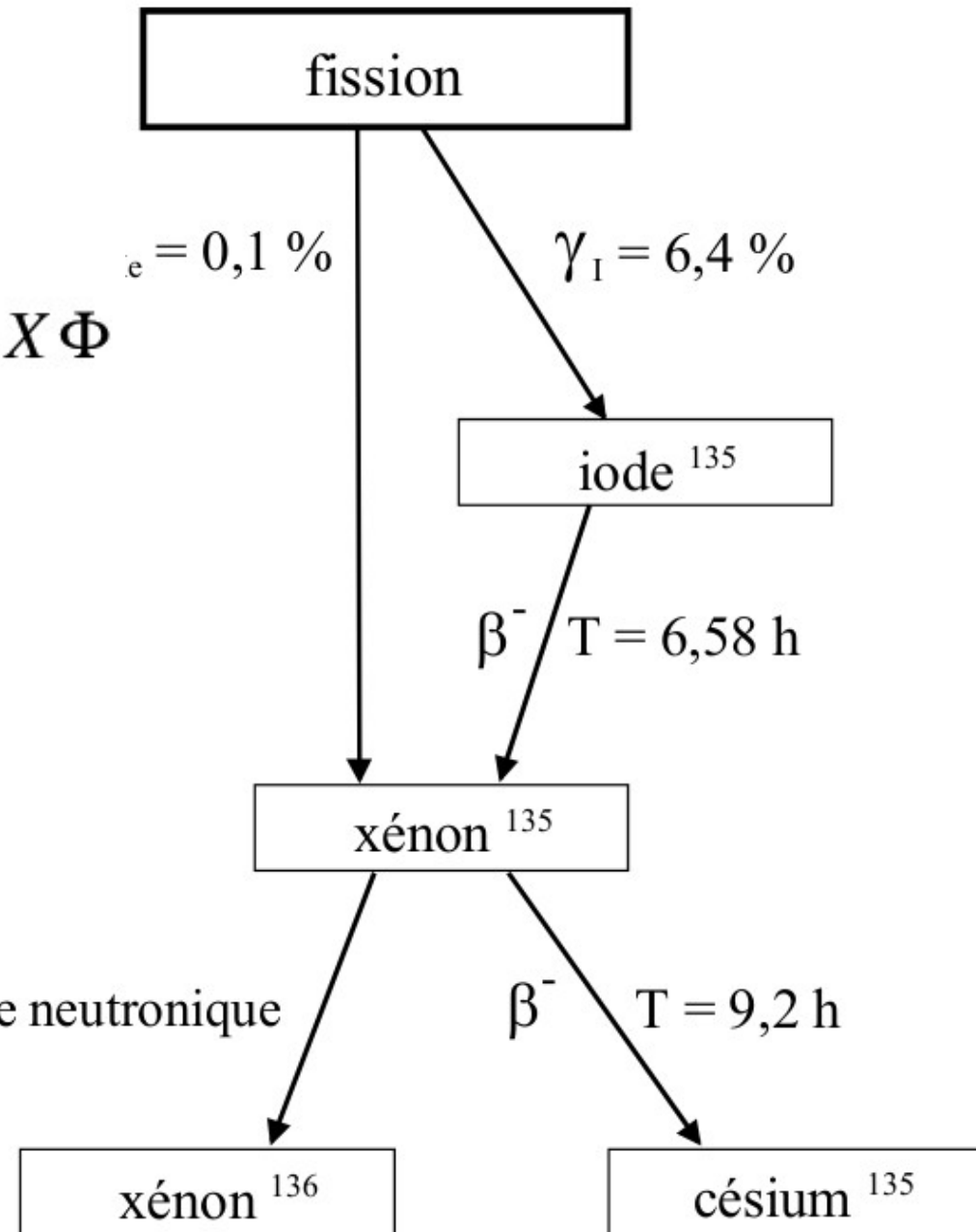
$$\frac{dI}{dt} = \gamma_I \Sigma_{f,c} \Phi - \lambda_I I$$

$$\frac{dX}{dt} = \gamma_X \Sigma_{f,c} \Phi + \lambda_I I - \lambda_X X - \sigma_{a,X} X \Phi$$

Régime permanent :

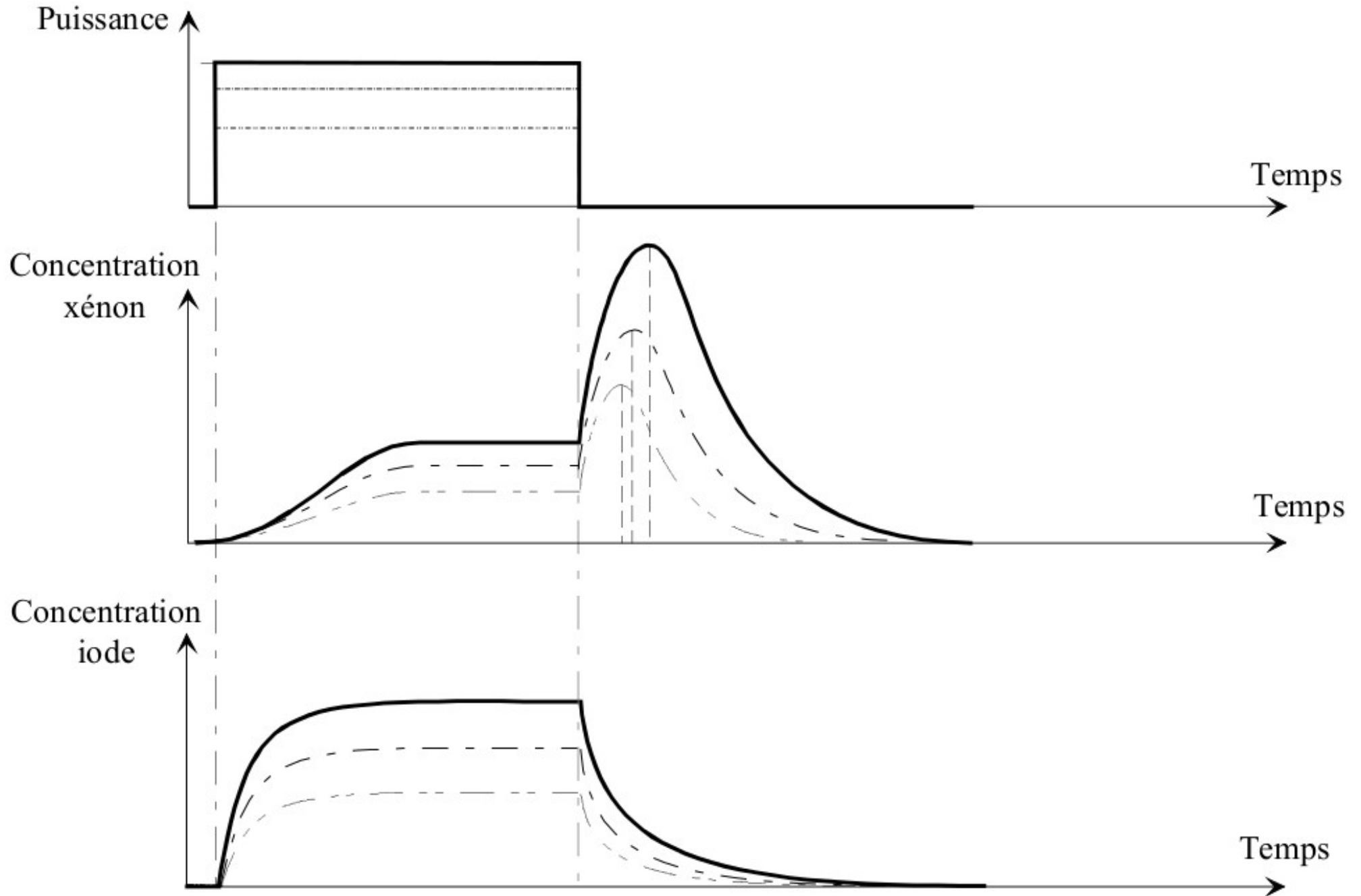
$$\frac{dI}{dt} = 0 \Rightarrow I_{\text{éq}} = \frac{\gamma_I \Sigma_{f,c} \Phi}{\lambda_I}$$

$$\frac{dX}{dt} = 0 \Rightarrow X_{\text{éq}} = \frac{(\gamma_X + \gamma_I) \Sigma_{f,c} \Phi}{\lambda_X + \sigma_{a,X} \Phi}$$

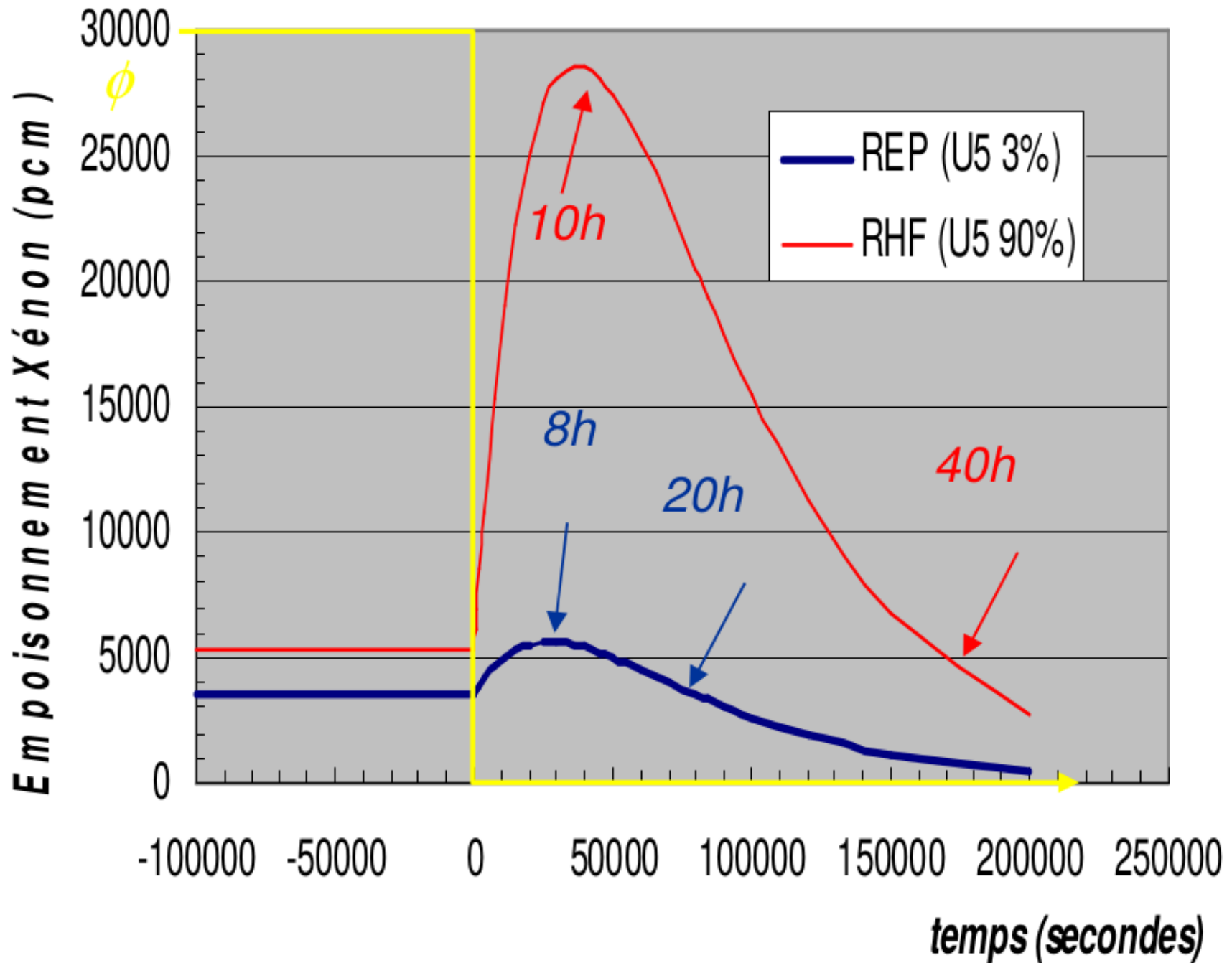


# Effet Xénon : « pic Xénon »

---

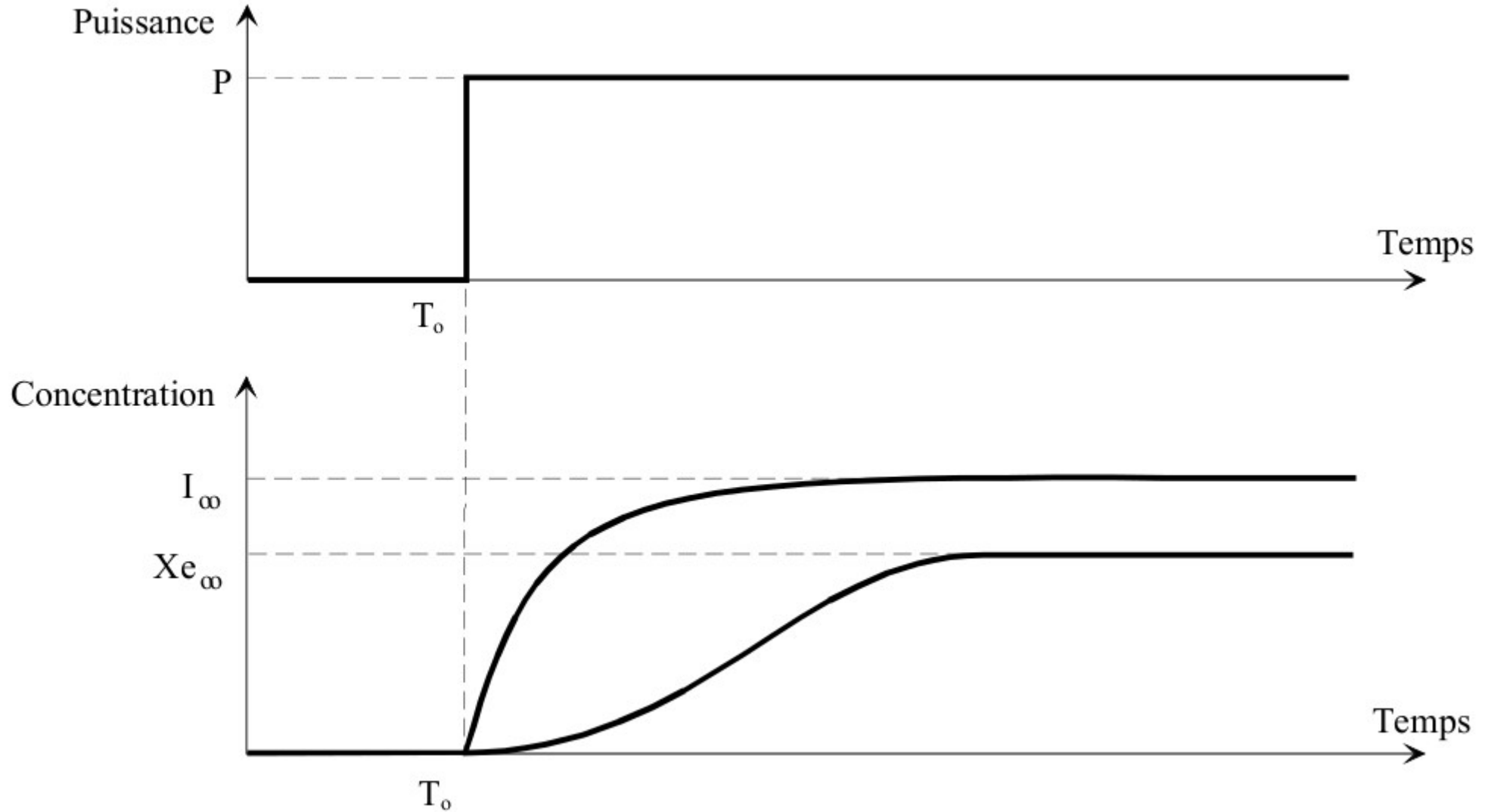


# Effet Xénon : « pic Xénon »

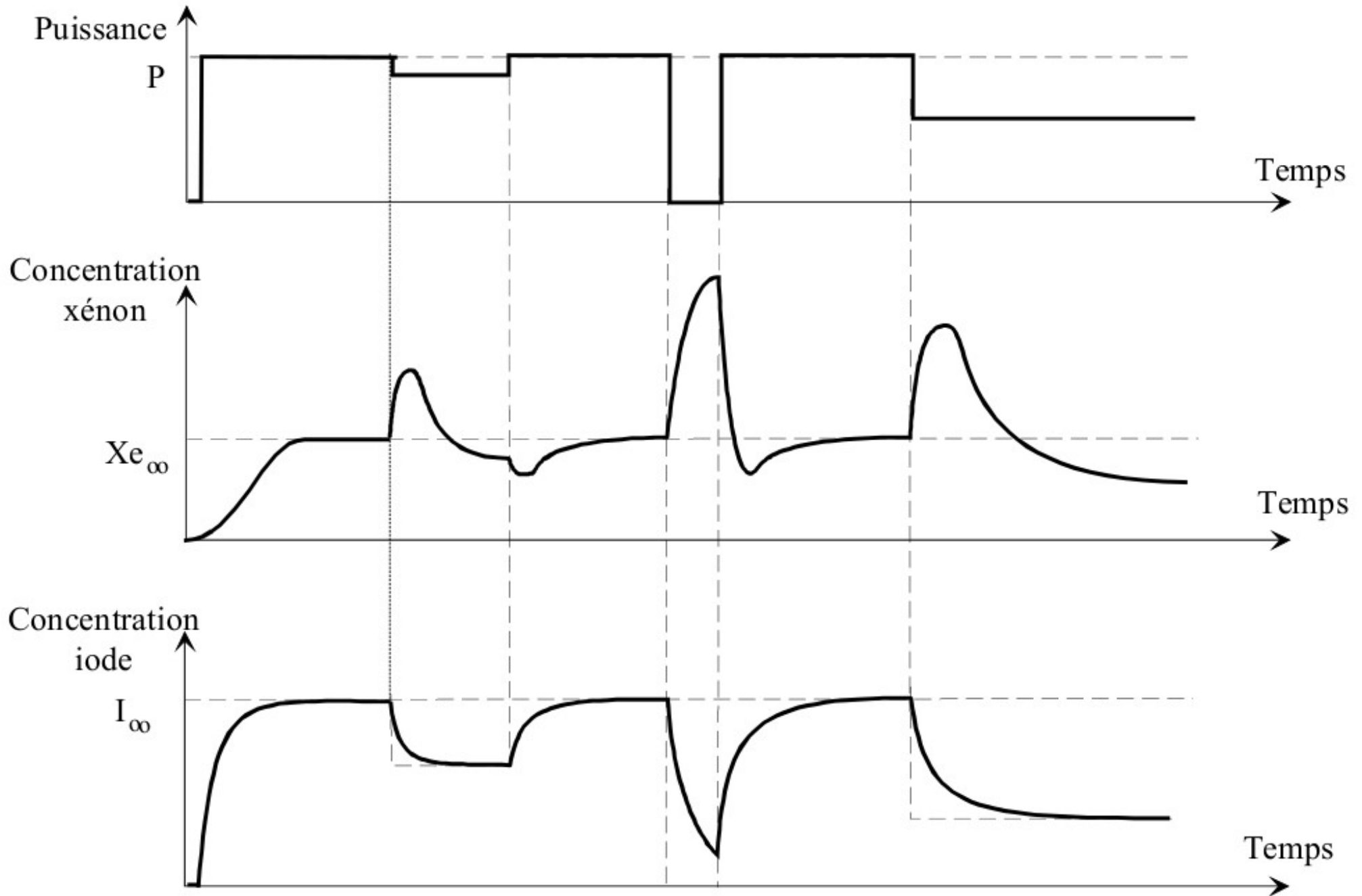


# Effet Xénon : au démarrage

---



# Effet Xénon : « pic Xénon »



# Effet Samarium : chaîne du Samarium-149

Régime permanent :

$$\frac{dP}{dt} = 0 \Rightarrow P_{\text{éq}} = \frac{\gamma_P \Sigma_{f,c} \Phi}{\lambda_P}$$

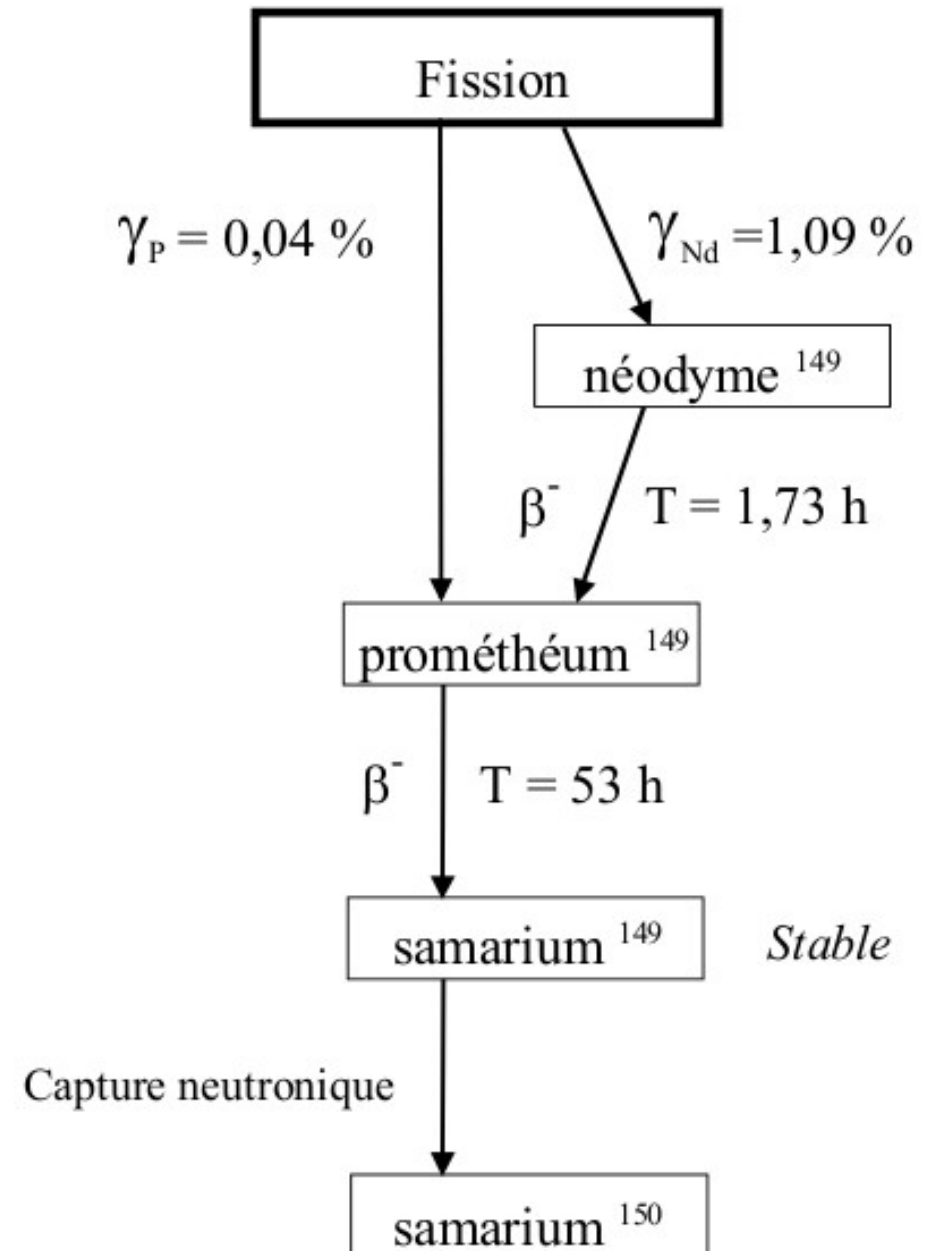
$$\frac{dS}{dt} = 0 \Rightarrow S_{\text{éq}} = \frac{\gamma_P \Sigma_{f,c}}{\sigma_{a,S}}$$

Empoisonnement :

$$\Pi_{\text{éq}} = \frac{\gamma_P \Sigma_{f,c}}{\Sigma_{a,c}}$$

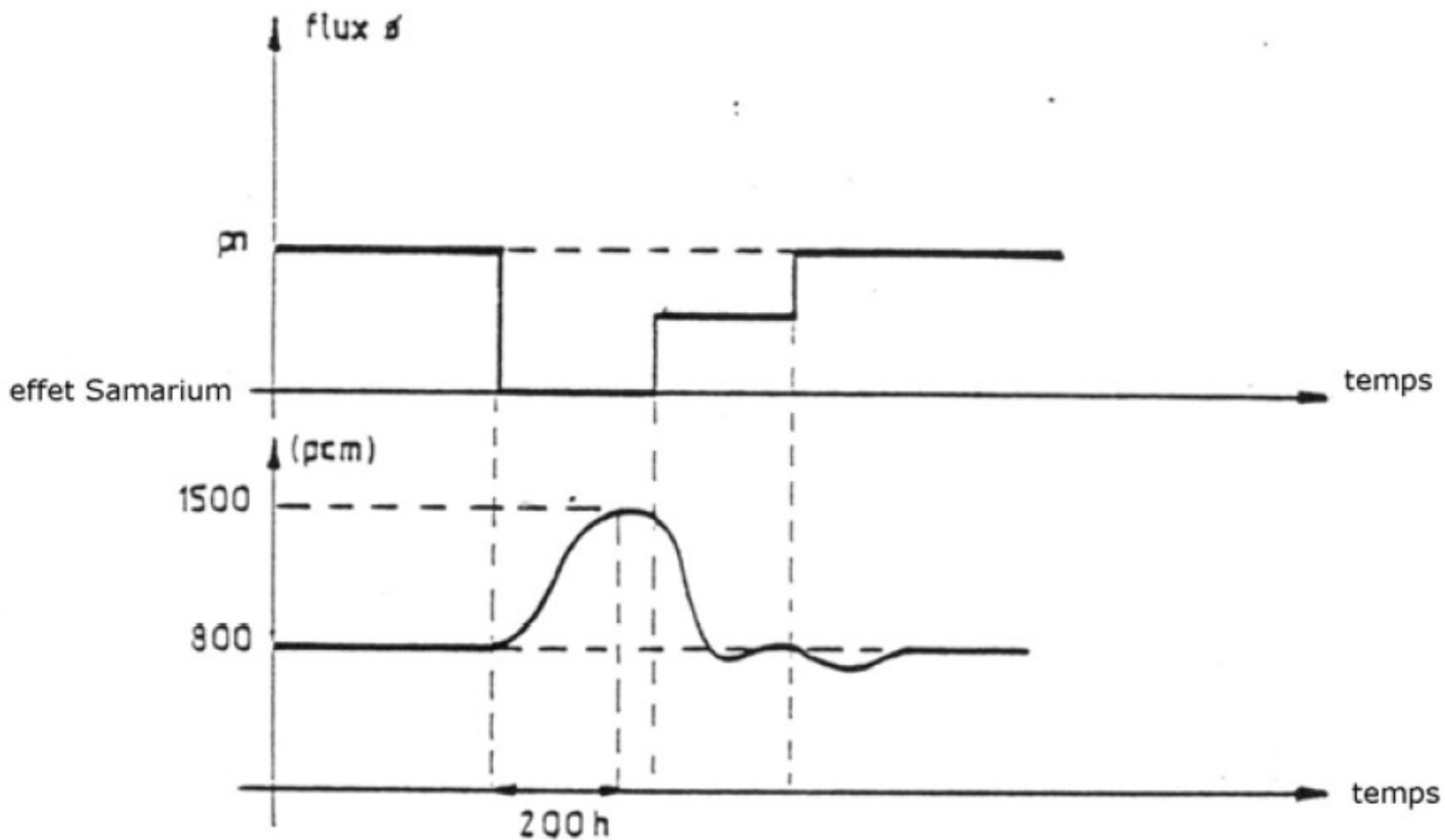
$$\Pi_{as} = \frac{\gamma_P \Sigma_{f,c}}{\Sigma_{a,c}} \left( 1 + \frac{\sigma_{a,S} \Phi}{\lambda} \right)$$

REP : ~ 800 pcm (équilibre)  
+ ~ 400 pcm (arrêt)



# Effet Samarium

---

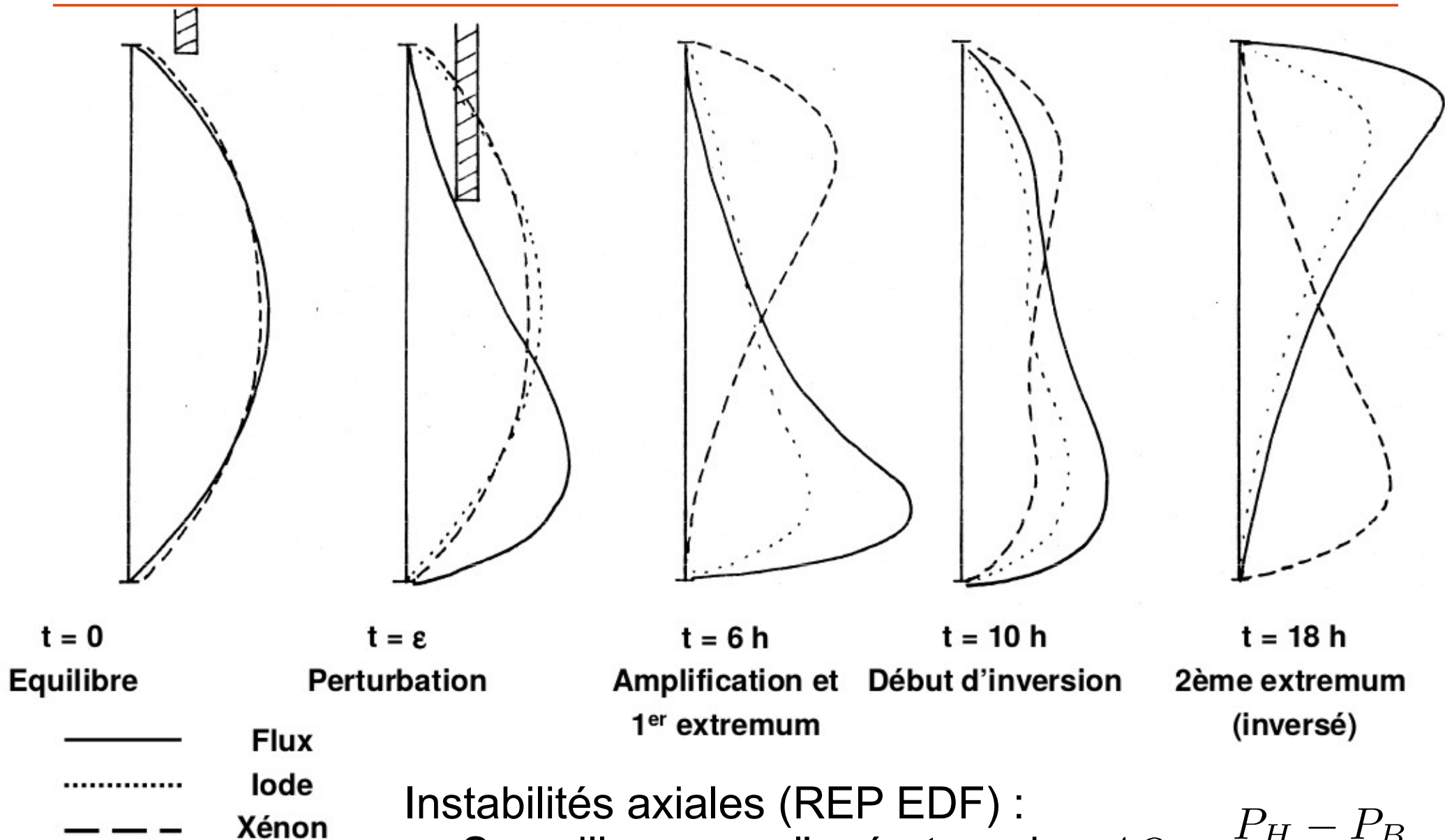




# Principaux poisons (après Xe-135 et Sm-149)

Isotope	Section d'absorption	Période	Rendement de fission (U235)
Rh103	143	Stable	2,8
Nd143	341	Stable	5,9
Xe131	120	Stable	2,9
Cs133	29	Stable	6,5
Tc99	22	$2,1 \cdot 10^5$ a	6
Sm152	213	Stable	0,28
Pm147	140	2,6 a	2,7
Sm151	14800	90 a	0,45
Eu153	400	Stable	0,15
Nd145	49	Stable	3,8

# Empoisonnement : oscillations axiales

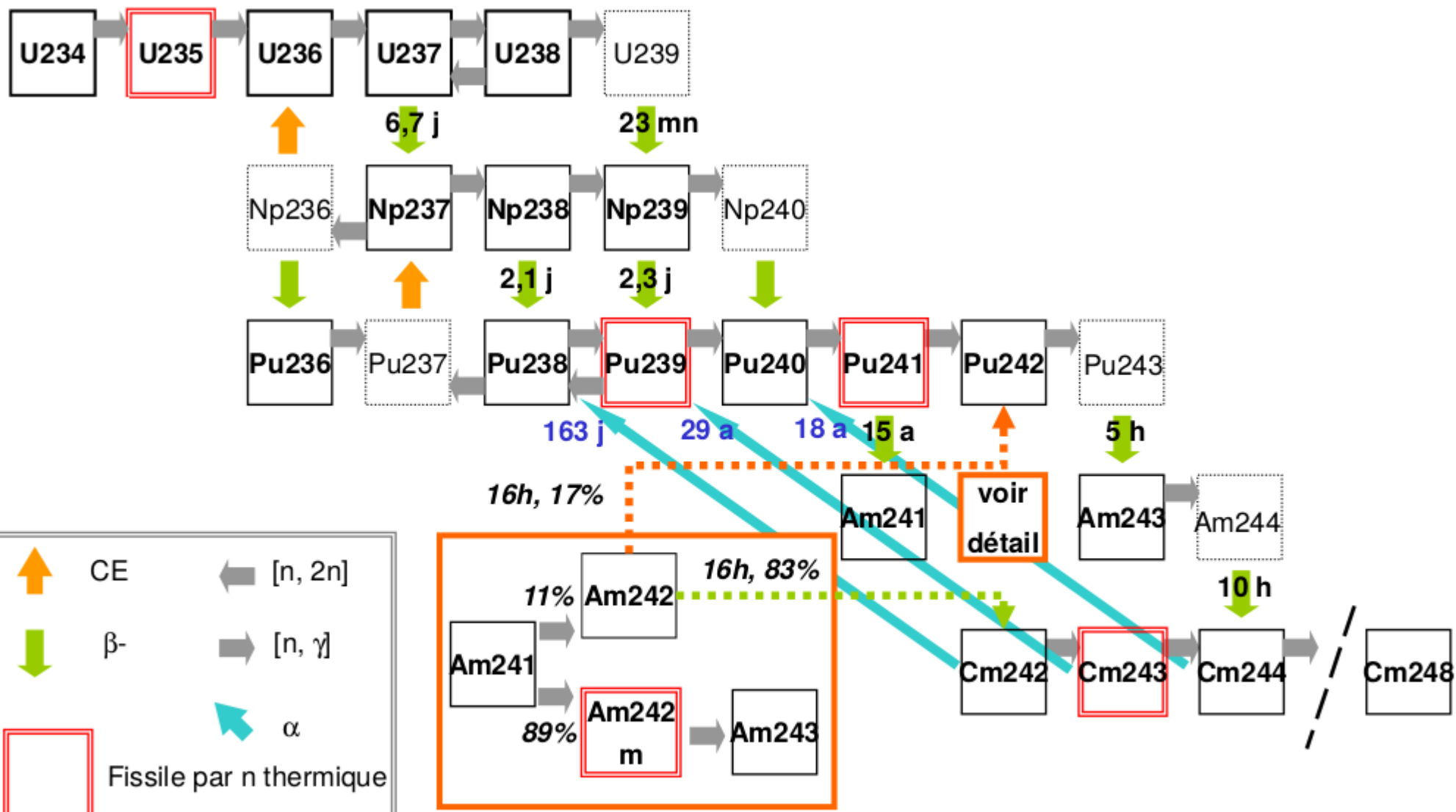


Instabilités axiales (REP EDF) :

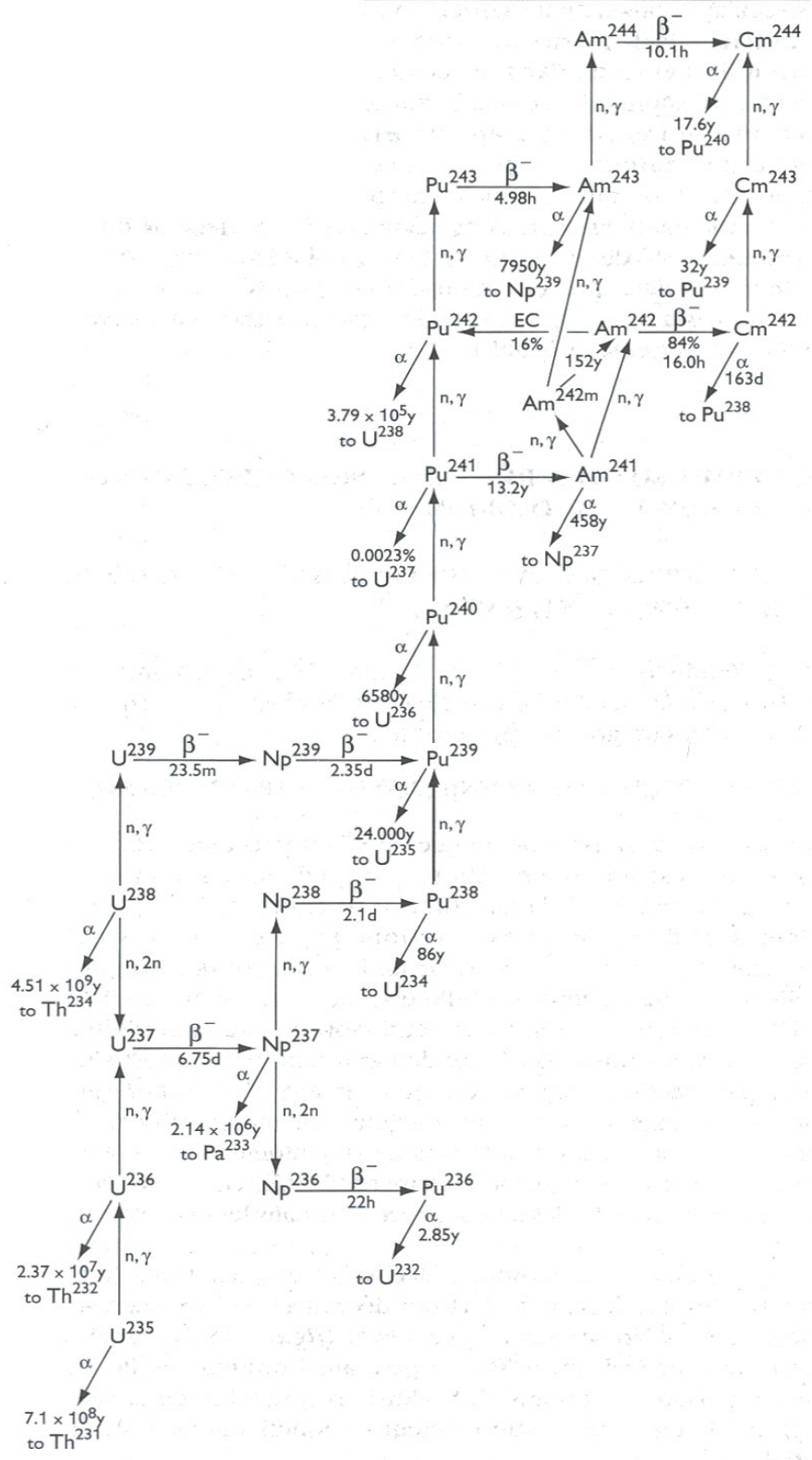
→ Surveillance par l'opérateur de :  $AO = \frac{P_H - P_B}{P_H + P_B}$

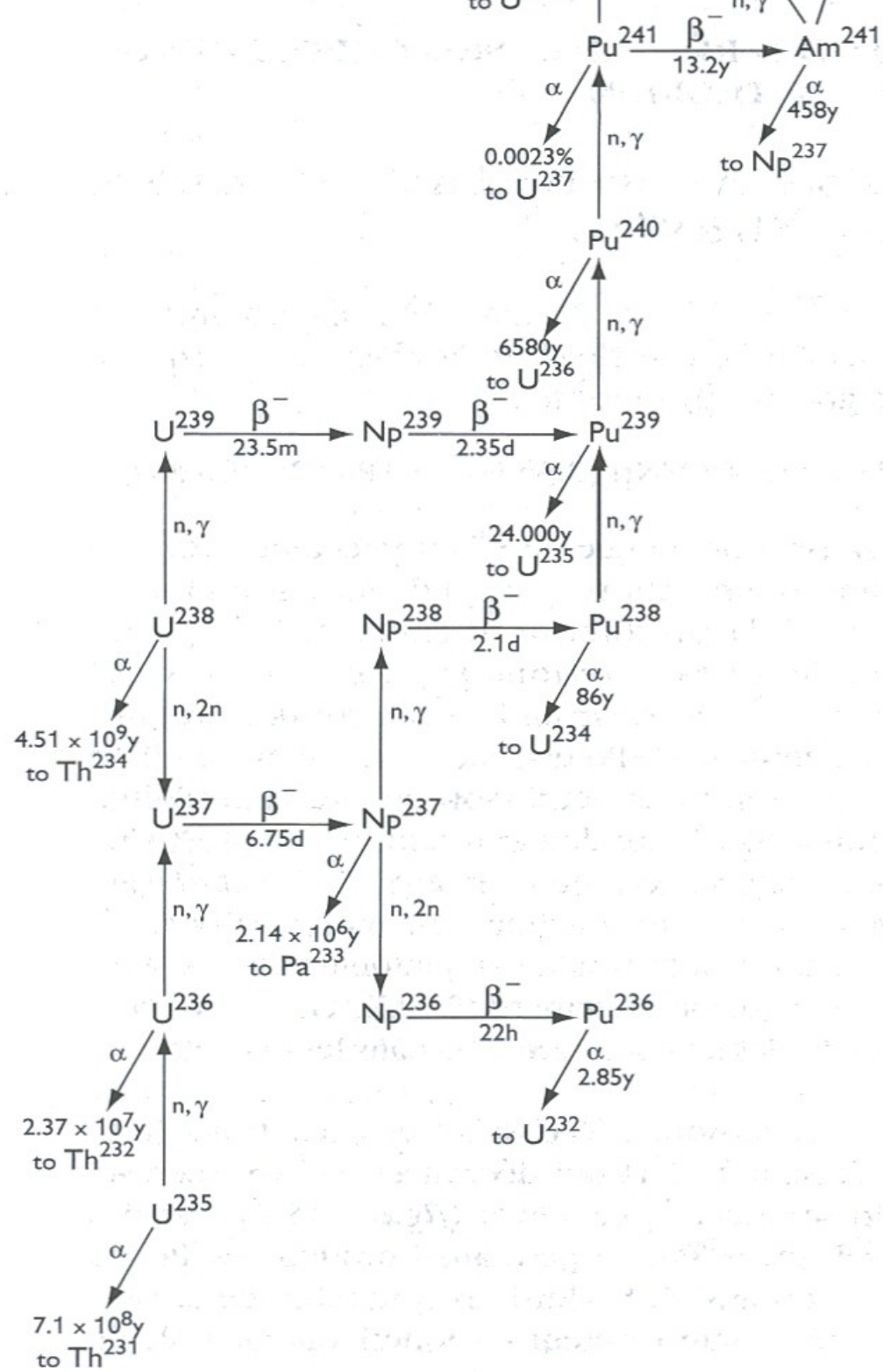
# Evolution des noyaux lourds

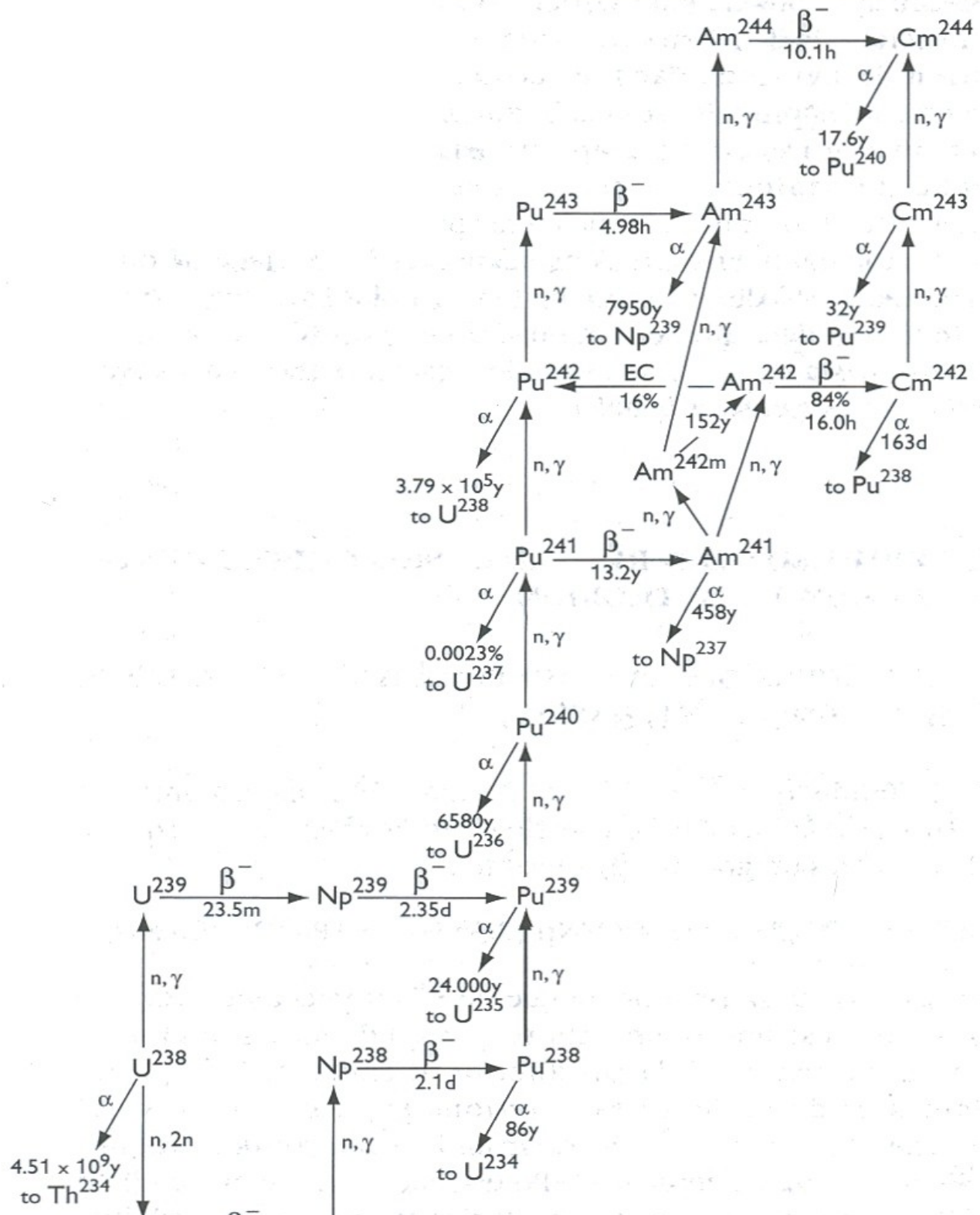
## Chaîne de l'uranium : formation d'actinides



Seules les décroissances α de « courte » période sont indiquées







# Actinides produits dans le réacteur

---

Isotope	Mode de décroissance	Période radioactive (ans)	Énergie (MeV)	$\sigma_f$ thermique (b)	$\sigma_c$ thermique (b)
U235	$\alpha$	$7 \cdot 10^8$	4,4	582,6	98,9
U236	$\alpha$	$2,3 \cdot 10^7$	4,5	0	5,1
U238	$\alpha$	$4,5 \cdot 10^9$	4,3	0	2,7
Np237	$\alpha$	$2,1 \cdot 10^6$	4,8	21,5	175,9
Pu238	$\alpha$	87,7	5,6	17,9	54,0
Pu239	$\alpha$	$2,41 \cdot 10^4$	5,2	747,3	270,4
Pu240	$\alpha$	$6,56 \cdot 10^3$	5,2	0,056	288,8
Pu241	$\beta^-$	14,4	0,005	1012,3	358,2
Pu242	$\alpha$	$3,76 \cdot 10^5$	5	< 0,2	18,5
Am241	$\alpha$	432,6	5,5	3,2	587
Pu242	$\alpha$	$3,76 \cdot 10^5$	5	< 0,2	18,5

# Noyaux lourds : équations d'évolution

---

## ◆ Apparition

Capture d'un neutron par l'isotope de masse A-1 ❶

Décroissance radioactive de l'élément [A, Z-1] ❷

Réaction [n,2n] sur l'isotope de masse A+1 ❸

## ◆ Disparition

Absorption d'un neutron (capture, fission, [n,2n]) ❹

Décroissance radioactive ❺

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \underbrace{\sigma_{c,k} N_k(t) \phi}_{\text{❶}} + \underbrace{\lambda_j N_j(t)}_{\text{❷}} + \underbrace{\sigma_{(n,2n),l} N_l(t) \phi}_{\text{❸}} - \left[ \underbrace{\sigma_{a,i} N_i(t) \phi}_{\text{❹}} + \underbrace{\lambda_i N_i(t)}_{\text{❺}} \right]$$

❶

❷

❸

❹

❺



# Chaîne de l'uranium : équations d'évolution

$$\frac{dN_{U5}}{dt} = -\sigma_{a,U5}N_{U5}\phi$$

$$\frac{dN_{U6}}{dt} = +\sigma_{c,U5}N_{U5}\phi - \sigma_{a,U6}N_{U6}\phi$$

$$\frac{dN_{U8}}{dt} = -\sigma_{a,U8}N_{U8}\phi$$

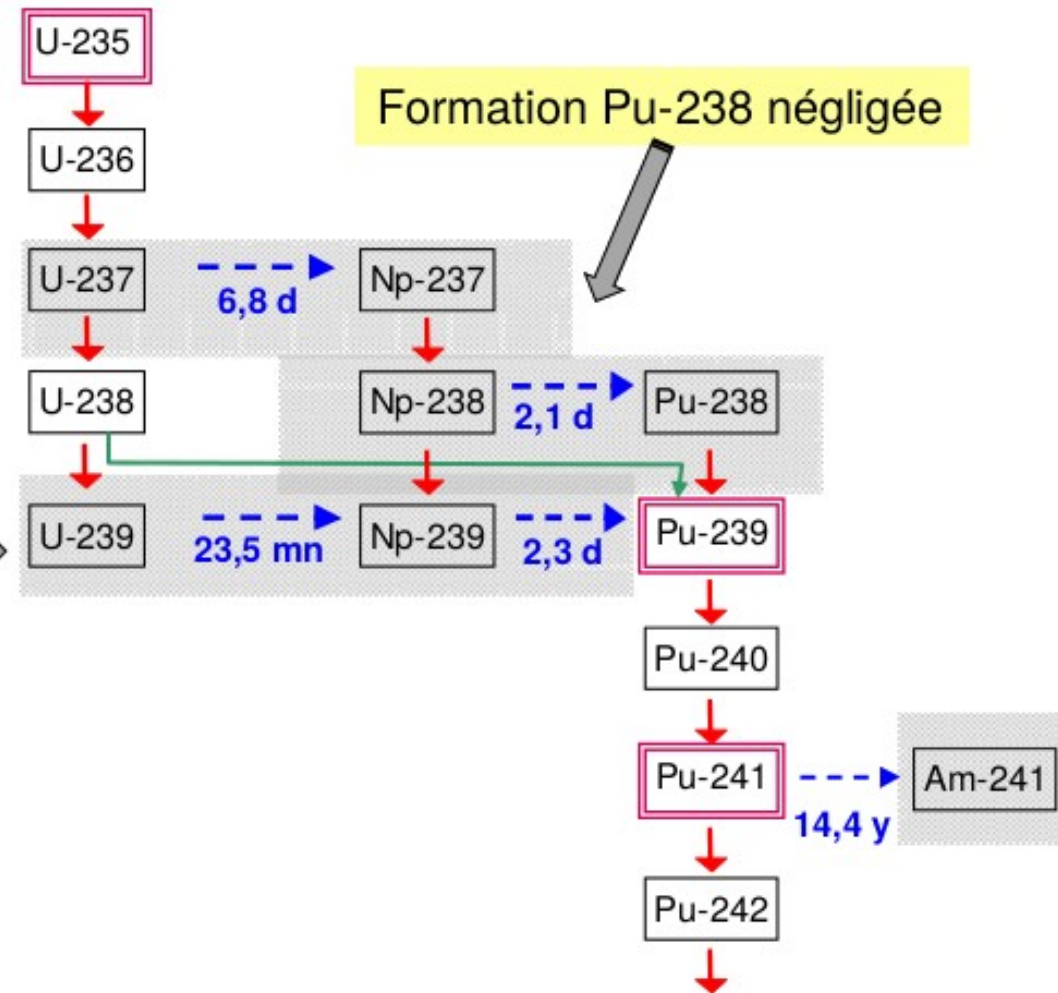
Décroissances intermédiaires négligées

$$\frac{dN_{Pu9}}{dt} = +\sigma_{c,U8}N_{U8}\phi - \sigma_{a,Pu9}N_{Pu9}\phi$$

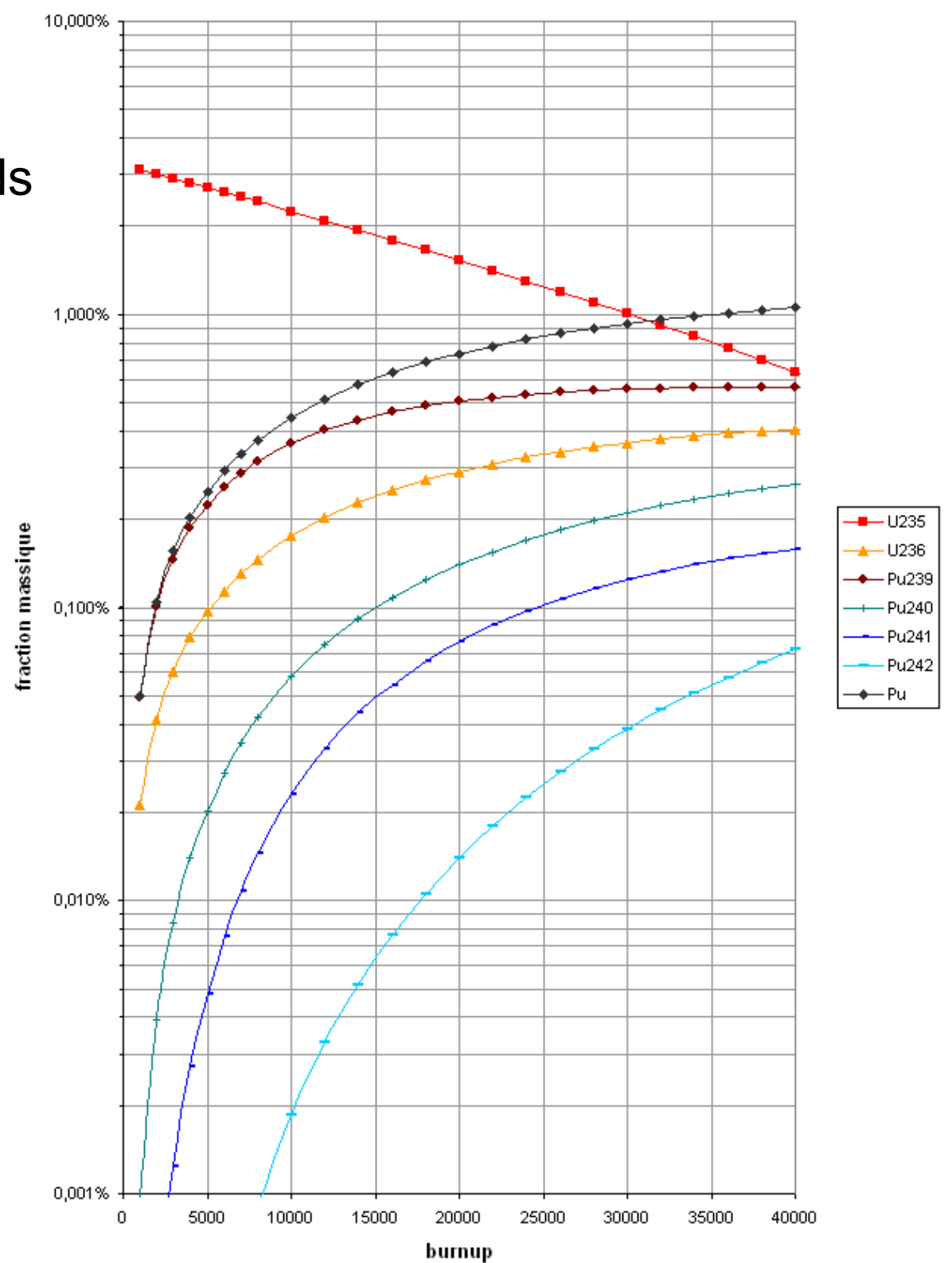
$$\frac{dN_{Pu0}}{dt} = +\sigma_{c,Pu9}N_{Pu9}\phi - \sigma_{a,Pu0}N_{Pu0}\phi$$

$$\frac{dN_{Pu1}}{dt} = +\sigma_{c,Pu0}N_{Pu0}\phi - \sigma_{a,Pu1}N_{Pu1}\phi - \lambda_{Pu1}N_{Pu1}$$

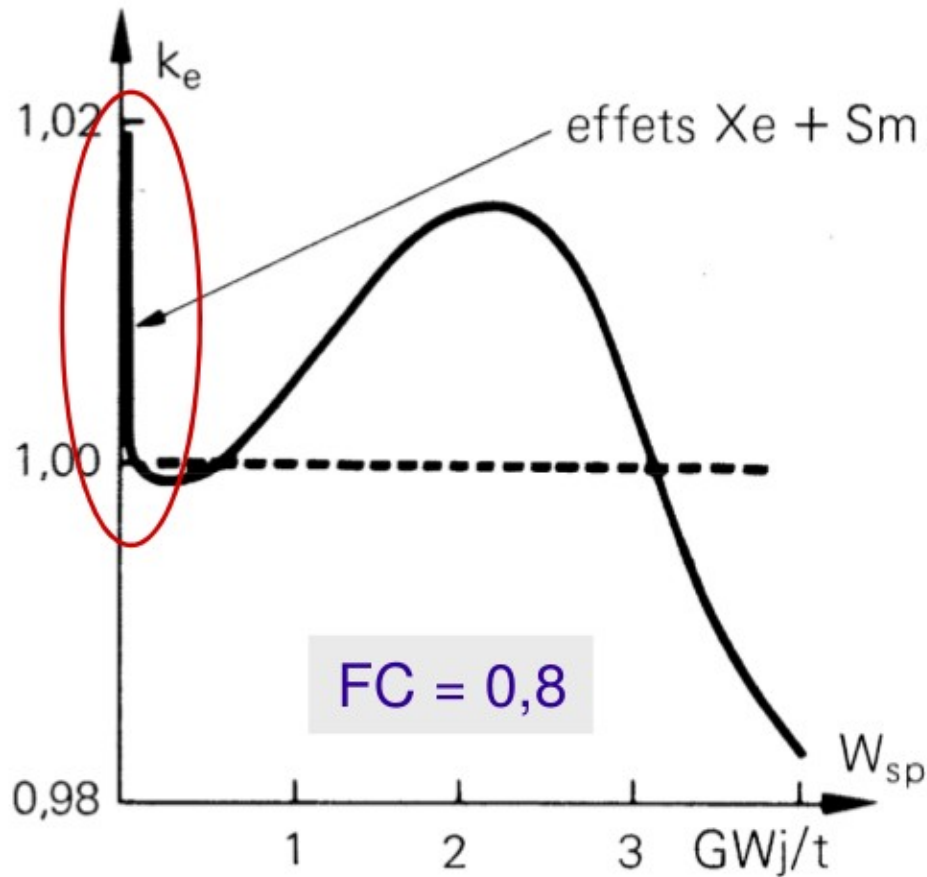
$$\frac{dN_{Pu2}}{dt} = +\sigma_{c,Pu1}N_{Pu1}\phi - \sigma_{a,Pu2}N_{Pu2}\phi$$



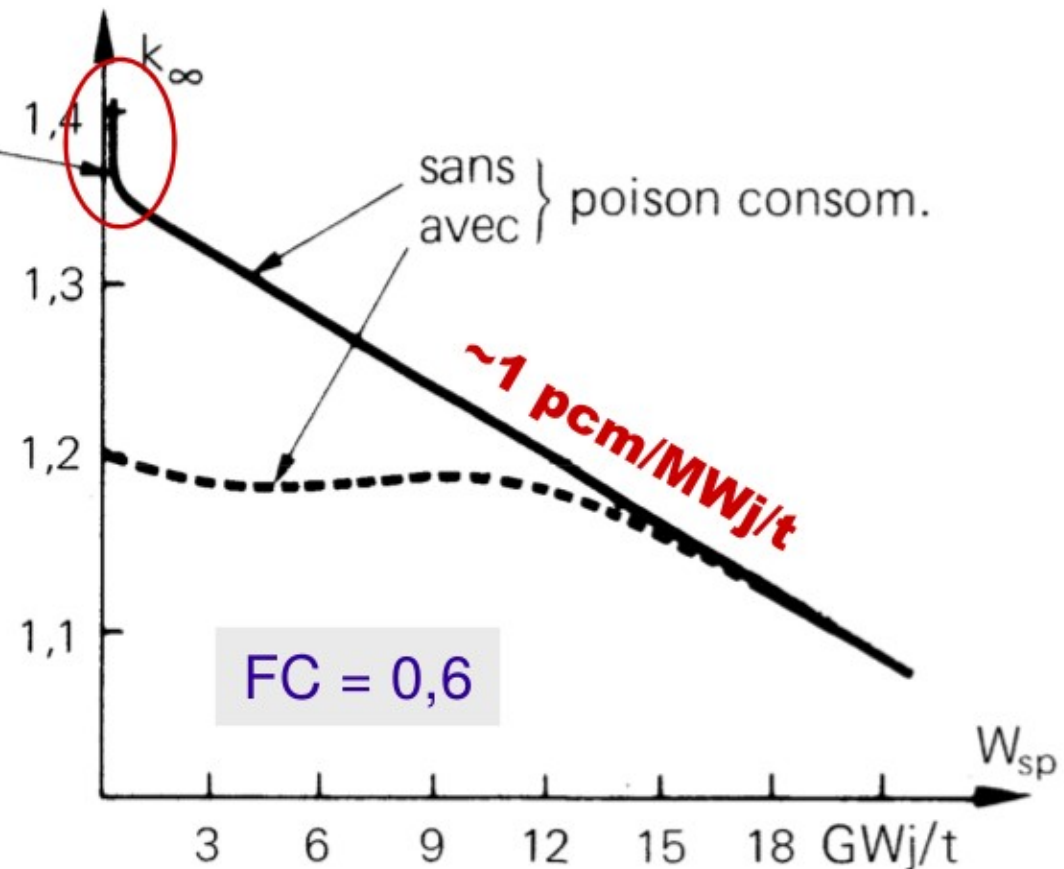
# Evolution des noyaux lourds



# Evolution de la réactivité



(a) U-nat.



(b) U-enrichi

Importance du plutonium produit dans le bilan de réactivité

# Résolution des équations d'évolution

---

- Sections efficaces **dépendantes du flux**
  - Evolution du spectre des neutrons :
    - Spectre **plus « dur » avec le plutonium**
- Equations différentielles couplées : « équations de Bateman »
- résolution numérique

- Introduction de la « **fluence** » : **flux intégré** dans le temps :

$$s = \int \phi(t) dt \quad ds = \phi(t) dt$$

$$\frac{dN_Y}{ds} = +\sigma_{c,X} N_X - \sigma_{a,Y} N_Y - \frac{\lambda_Y}{\phi} N_Y$$

- Irradiation intégrée du combustible
- S'exprime en neutrons / kb :  $1 \text{ n / kb} = 10^{21} \text{ n / cm}^2$

# Fluence et taux de combustion (« burn-up »)

---

- Plutôt que la fluence  $s$ , on utilise aussi le **taux de combustion** dit aussi taux de « burn-up » :

$$burnup = \frac{1}{\rho_c} \int_0^T \left[ \sum_i \kappa_i N_i(t) \bar{\sigma}_{f,i}(t) \right] \bar{\phi}(t) dt$$

$\rho_c$  : masse volumique moyenne des noyaux lourds

$\kappa_i$  : énergie produite par fission de l'isotope  $i$  (MeV)

$N_i$  : concentration de l'isotope  $i$  (noyaux/cm<sup>3</sup>)

$\bar{\sigma}_{f,i}$  : section moyenne de fission de l'isotope  $i$  (cm<sup>2</sup>)

$\bar{\phi}$  : flux moyen (n/cm<sup>2</sup>/s)

- Quantité d'énergie produite **par unité de masse initiale de noyaux**
- Unité : J/g, ou plutôt MWj/tonne : 1 MWj/t = 86400 MJ/t
- Les grandeurs caractéristiques de l'évolution du combustible s'expriment en **fonction du « burn-up »**.

# « Contenu énergétique » du combustible

---

**Table 9.3.** Energy per unit mass from fission of uranium, at different degrees of enrichment.

Category	Enrichment, $w$ (%)	Energy per Unit Mass <sup>a</sup>		
		J/kg	GWd/t	Tonne/GWyr(e) <sup>b</sup>
Natural U	0.711	$5.84 \times 10^{11}$	6.8	169
Enriched U	3.2	$2.63 \times 10^{12}$	30.4	38
Enriched U	3.5	$2.87 \times 10^{12}$	33.3	34
Enriched U	3.75	$3.08 \times 10^{12}$	35.6	32
Enriched U	5.0	$4.10 \times 10^{12}$	47.5	24
Pure $^{235}\text{U}$	100	$8.21 \times 10^{13}$	950	1.2

<sup>a</sup>Thermal energy, assuming fission of *all*  $^{235}\text{U}$ , a release of 200 MeV per  $^{235}\text{U}$  fission, and no fission of other nuclides.

<sup>b</sup>Assuming a thermal conversion efficiency of 32%.

# Combustible neuf / utilisé (1 tonne)

---

Nuclide	Half-life (years)	Activity (Bq)	Mass (kg)	Isotopic Percent
Input fuel				
$^{234}\text{U}$	$2.46 \times 10^5$		0.05	0.005
$^{235}\text{U}$	$7.04 \times 10^8$		37.5	3.75
$^{238}\text{U}$	$4.47 \times 10^9$		962.4	96.24
Total HM <sup>a</sup>			1000	

Nuclide	Half-life (years)	Activity (Bq)	Mass (kg)	Isotopic Percent
Spent fuel				
$^{234}\text{U}$	$2.46 \times 10^5$	$4.70 \times 10^{10}$	0.2	0.02
$^{235}\text{U}$	$7.04 \times 10^8$	$6.85 \times 10^8$	8.6	0.90
$^{236}\text{U}$	$2.34 \times 10^7$	$1.21 \times 10^{10}$	5.1	0.53
$^{238}\text{U}$	$4.47 \times 10^9$	$1.16 \times 10^{10}$	934.4	98.54
Total U			948.2	100
$^{237}\text{Np}$	$2.14 \times 10^6$	$1.49 \times 10^{10}$	0.57	87
$^{239}\text{Np}$	0.0065	$7.18 \times 10^{17}$	0.08	13
Total Np			0.65	100
$^{238}\text{Pu}$	87.7	$1.38 \times 10^{14}$	0.22	2.1
$^{239}\text{Pu}$	$2.41 \times 10^4$	$1.28 \times 10^{13}$	5.56	53.2
$^{240}\text{Pu}$	6564	$2.07 \times 10^{13}$	2.46	23.6
$^{241}\text{Pu}$	14.29	$5.93 \times 10^{15}$	1.54	14.8
$^{242}\text{Pu}$	$3.73 \times 10^5$	$9.66 \times 10^{10}$	0.66	6.3
Total Pu			10.4	100
$^{241}\text{Am}$	432.2	$6.41 \times 10^{12}$	0.05	24
$^{243}\text{Am}$	7370	$1.18 \times 10^{12}$	0.16	76
Total Am			0.21	100
$^{244}\text{Cm}$	18.1	$1.54 \times 10^{14}$	0.05	



# Combustible neuf / utilisé (1 tonne)

---

- 94 % : uranium  $^{238}\text{U}$
- ~1 % : uranium  $^{235}\text{U}$  : peut être recyclé
- ~1 % : plutonium  $^{239}\text{Pu}$  : peut être recyclé
- 3 % : produits de fission :
  - Nombreux éléments, stables ou de courte demi-vie
  - Éléments de vie intermédiaire :  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{90}\text{Sr}$
  - Solides, liquides, gazeux ; éléments corrosifs
  - Toxicité de certains éléments formés
- ~1 % actinides à long temps de vie

# Combustible neuf / utilisé : REP 1000 MWe

---

Un REP de 1000 Mwe alimenté en UOX produit, par an :

- ◆ 6 TWh d'énergie électrique
- ◆ 21 t de combustible utilisé
  - ✓ 20 t d'uranium (à 0,9 % en U235)
  - ✓ 200 kg de plutonium
  - ✓ 21 kg d'actinides mineurs
    - 10,4 kg de neptunium
    - 9,8 kg d'américium
    - 0,8 kg de curium
  - ✓ 760 kg de produits de fission
    - 35 kg de césium
    - 18 kg de technétium
    - 16 kg de zirconium
    - 5 kg de palladium
    - 3 kg d'iode
    - Etc.

# Combustible neuf / usé (1 tonne)

initial

final

$^{235}\text{U}$ : 33 kg

Fission: 21 kg 60%

Transmutation en  $^{236}\text{U}$ : 4 kg Poison neutronique

Intact: 8 kg Enrichissement 0,8%

$^{238}\text{U}$ : 967 kg

Intact: 943 kg

Transmutation en Pu (~70% fissile): 8,5 kg Recyclage ?

Fission: 14 kg (rapide ou via formation de  $^{239}\text{Pu}$ ) 40%

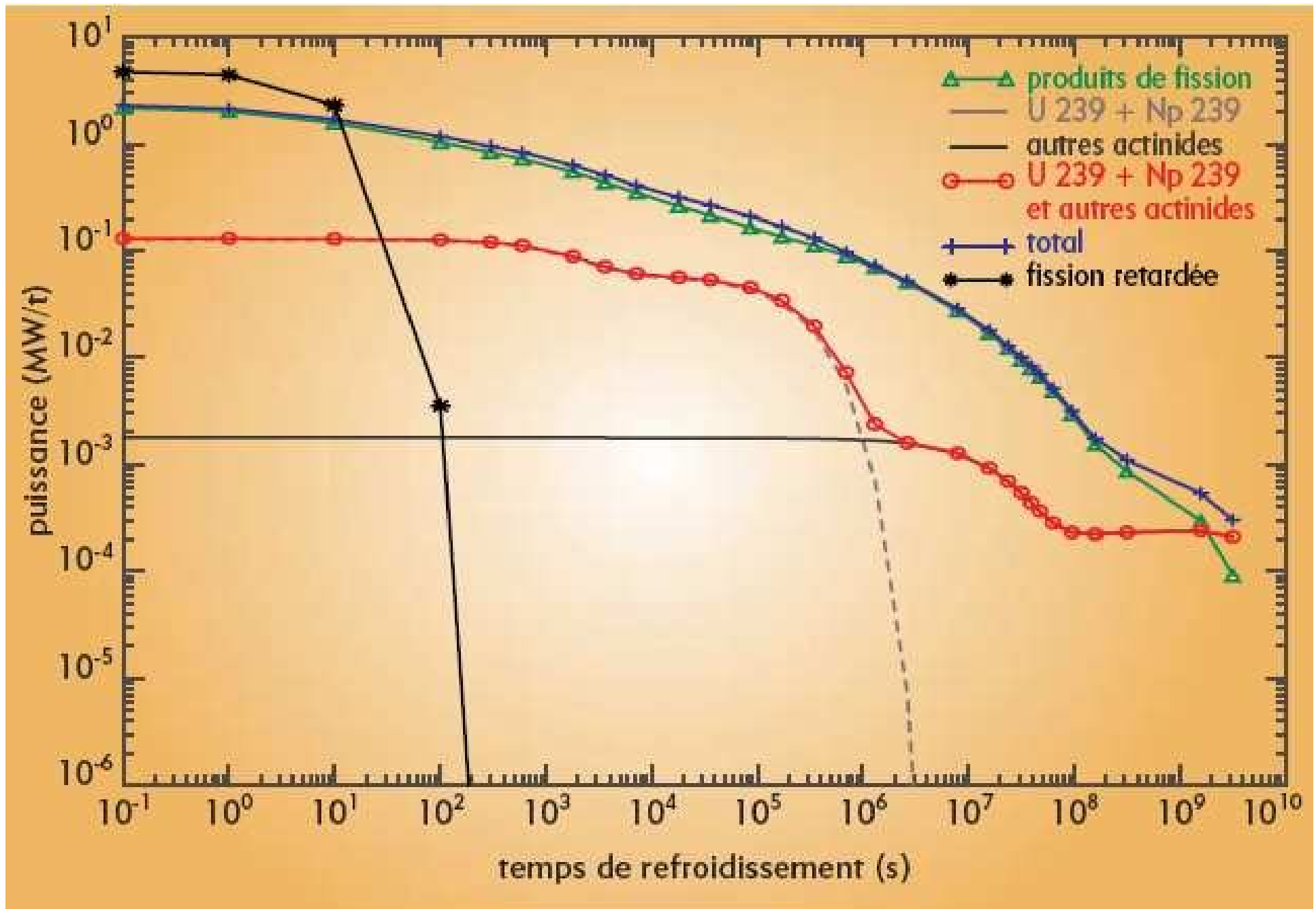
Transmutation en actinides mineurs: 1,5 kg Déchets

# Puissance résiduelle du combustible

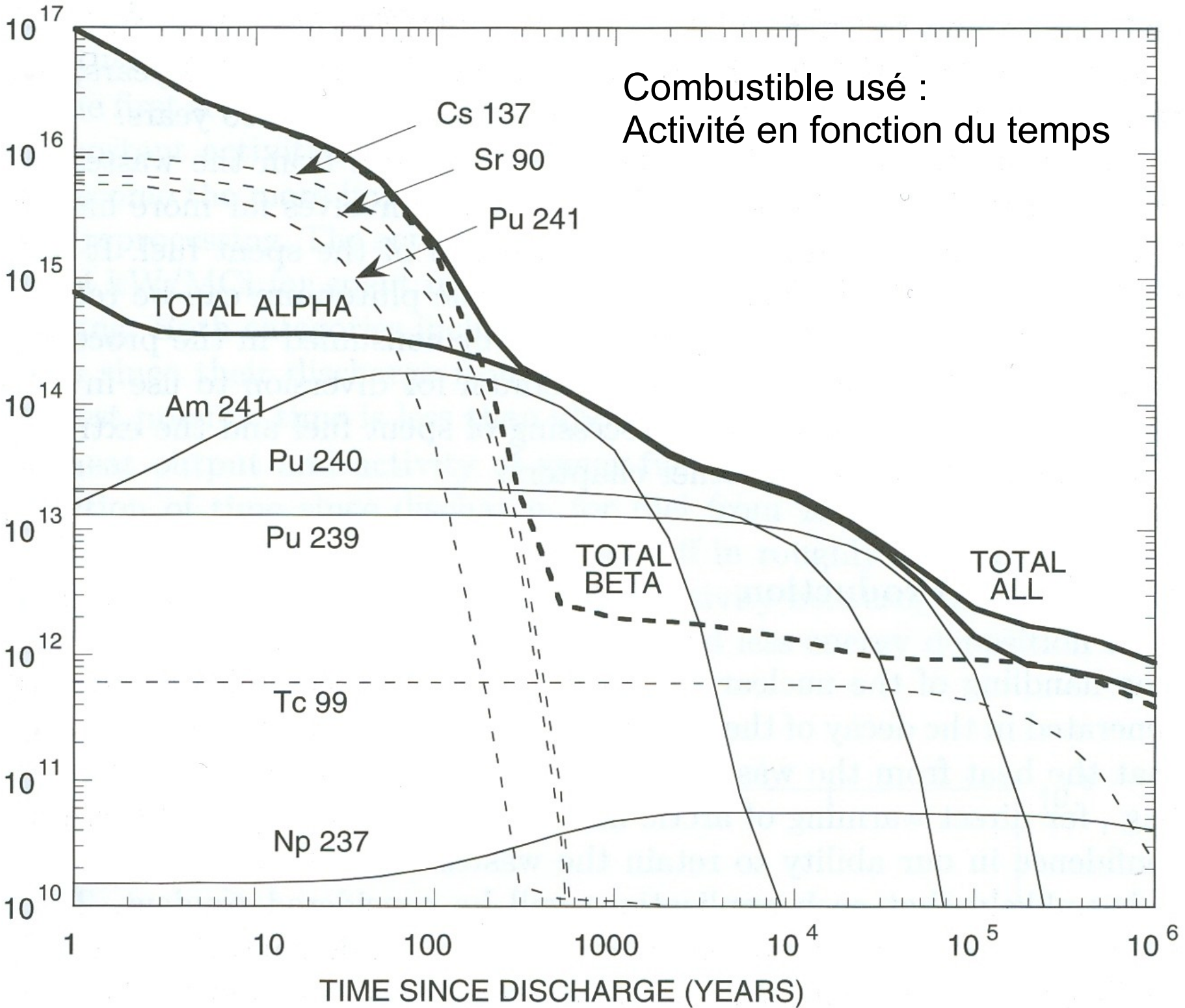
---

- Puissance **résiduelle** (désintégrations des isotopes présents)
  - 6 % de la **puissance nominale** quelques secondes après l'arrêt.
  - 0.6 % après 24h (15 MW pour un REP 900 Mwe)
    - Importance du refroidissement à l'arrêt
  - Les produits de fission **dominent pendant ~ qq siècles**
  - Les actinides **deviennent majoritaires** ensuite.
    - problématique du retraitement et du stockage des déchets

# Puissance résiduelle du combustible

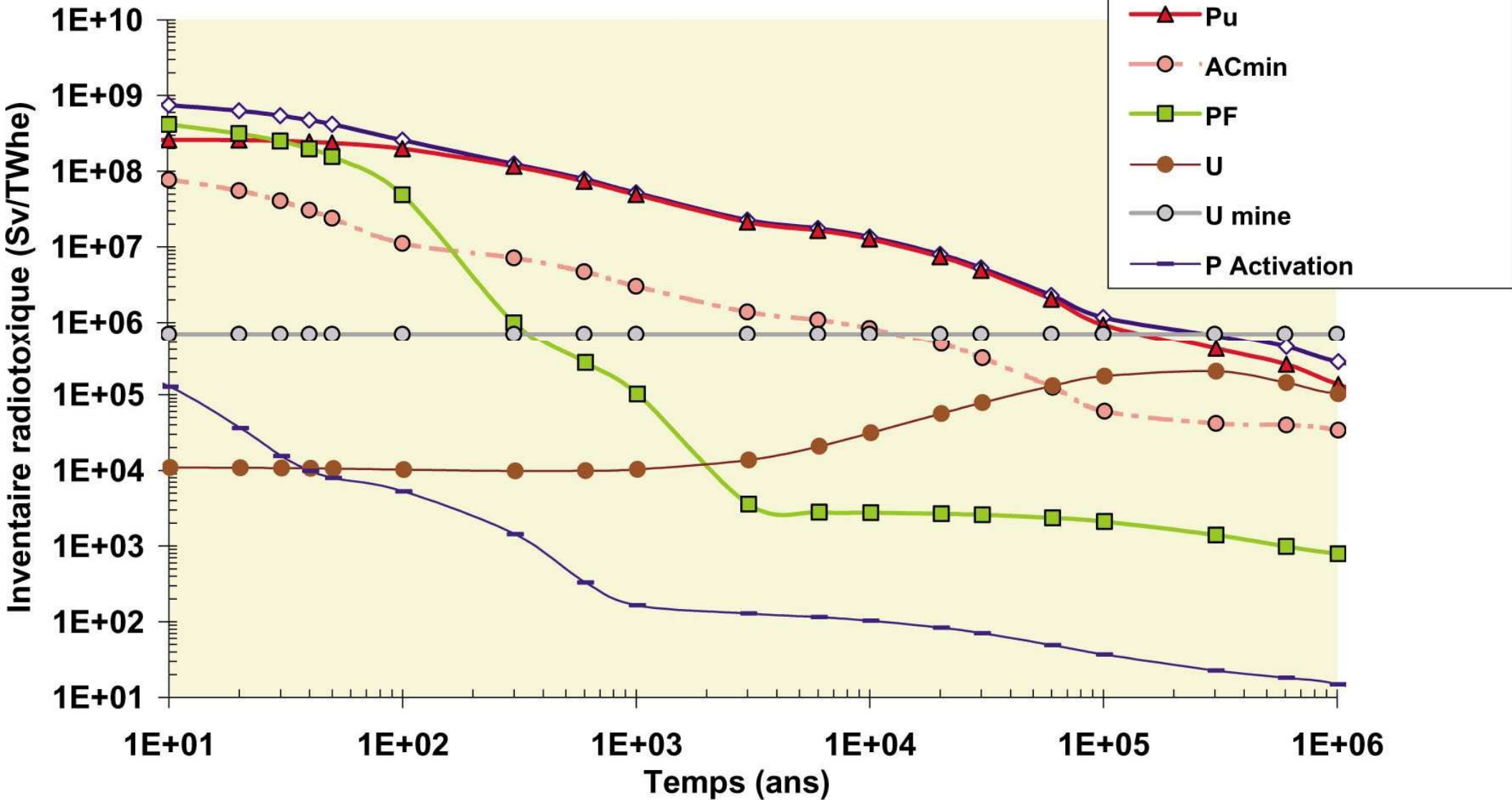


Combustible utilisé :  
Activité en fonction du temps



# Evolution dans le temps de l'inventaire radiotoxique des constituants d'un combustible UOX

(DPUI par ingestion CIPR72)



# Problématique des déchets

