REFERENCE 91

M. F. ITHURRALDE, J. KREMSER, J. LeCLERC, C. LOMBARD, J. MOREAU, AND C. ROBIN, "INTERPRETATION OF CRITICALITY EXPERIMENTS ON HOMOGENEOUS SOLUTIONS OF PLUTONIUM AND URANIUM," (IN FRENCH) COMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE REPORT CEA-R-2488 (1964). - Rapport CEA-R 2488 -

Service des Expériences Critiques

INTERPRETATION DES EXPERIENCES DE CRITICITE SUR DES SOLUTIONS HOMOGENES DE PLUTONIUM ET D'URANIUM

par

Marie France ITHURRALDE, Jacques KREMSER, Jean LECLERC, Christiane LOMBARD, Jean MOREAU, Claude ROBIN PREMIER MINISTRE COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE CEA-R 2488

INTERPRETATION DES EXPERIENCES DE CRITICITE SUR DES SOLUTIONS HOMOGENES DE PLUTONIUM ET D'URANIUM

par

Marie France ITHURRALDE, Jacques KREMSER, Jean LECLERC,

Christiane LOMBARD, Jean MOREAU, Claude ROBIN

Rapport CEA - R 2488

CENTRE D'ETUDES NUCLÉAIRES DE SACLAY



CEA-R 2488 - ITHURRALDE Marie-France, KREMSER Jacques LECLERC Jean, LOMBARD Christiane, MOREAU Jean, ROBIN Claude INTERPRETATION DES EXPERIENCES DE CRITICITE SUR DES SOLUTIONS HOMOGENES DE PLUTONIUM ET D'URANIUM. Sommaire. - Des expériences critiques sur des solutions de matières fissiles ont été faites dans des cuves de diverses géométries (cylindre, cylindre annulaire isolé, 'cylindre annulaire en interaction), les conditions de réflexion ont été également variées (sans réflexion, semi réflexion et réflexion totale par l'eau). La gamme des concentrations étudiées est assez étendue (18,8 à 104 g/1). L'interprétation de ces expériences a été entreprise dans le but de pouvoir résoudre les problèmes posés par l'emploi industriel de solutions homogènes de plutonium et d'uranium, plusieurs méthodes dont les domaines d'application sont différents ont été employées : méthode de diffusion, méthode de transport, méthode de Monte-Carlo. 1964 37 P. Commissariat à l'Energie Atomique - France CEA-R 2488 - ITHURRALDE Marie-France, KREMSER Jacques, LECLERC Jean, LOMBARD Christiane, MOREAU Jean, ROBIN Claude. INTERPRETATION OF CRITICALITY EXPERIMENTS ON HOMOGENEOUS SOLUTIONS OF PLUTONIUM AND URANIUM Summary. - Criticality experiments on solutions of fissionable materials have been carried out in tanks of various geometries (cylinder, isolated annular cylinder, interacting annular cylinders); the reflexion conditions have also been varied (without reflection, semi-reflection and total reflexion by water). The range of the studied concentrations is rather large (18,8 to 104 gms/liter). The interpretation of these experiments has been underkaten in order to . resolve the problems of the industrial use of homogeneous plutonium and uranium solutions. Several methods the fields of application of which are different have been used : diffusion method, transport method and Monte-Carlo method. 1964 37 p. Commissariat à l'Energie Atomique - France

.

INTERPRETATION DES EXPERIENCES DE CRITICITE SUR DES SOLUTIONS HOMOGENES DE PLUTONIUM ET D'URANIUM

- INTRODUCTION -

Des expériences critiques sur des solutions de matières fissiles ont été faites dans des cuves de diverses géométries placées dans des conditions de réflexions variées et pour une gamme de concentrations assez étendues [1] (Conférence de GENEVE 1964) .

L'interprétation de ces expériences a été faite dans le but de pouvoir résoudre les problèmes posés par l'emploi industriel de solutions homogènes de plutonium et d'uranium.Plusieurs méthodes, dont les domaines d'application sont différents, ont été utilisées : méthode de diffusion, méthode de transport, méthode de Monte-Carlo.

Les principales géomètries étudiées sont les suivantes :

- Cuve cylindrique de diamètre 300 mm, nue et réfléchie par de l'eau, du bois ou du béton Expériences sur des solutions de plutonium.
- Cuve cylindrique de <u>diamètre 420 mm</u>, nue Expériences sur des solutions de plutonium.
- Cylindre annulaire de diamètre 500 x 300 mm, nu et réfléchi intérieurement, réfléchi extérieurement Expériences sur des solutions de plutonium.
- 2 cylindres annulaires de diamètre 500 x 300 mm en interaction, nus et réfléchis intérieurement, semi-réfléchis et réfléchis extérieurement-Expériences sur des solutions de plutonium.

- I - CONDITIONS EXPERIMENTALES

1) - <u>Géométrie</u>

Les expériences ont été faites à SACLAY et à DIJON.

A SACLAY, elles ont eu lieu en géométrie cylindrique (cylindres "pleins") dans un ensemble nommé ALECTO et sont décrites en détail dans les références [2] et [3]. Le combustible est sous forme de nitrate en solution dans l'eau légère. Le réacteur est constitué d'une cuve cylindrique en acier inoxydable 18/8 (épaisseur 3 mm), qui peut être entourée d'un réflecteur d'eau ou de n'importe quel matériau solide, bois, paraffine, béton, etc... Dans le cas d'un réflecteur d'eau, les niveaux du réflecteur et de la solution sont identiques.

La géométrie exacte des expériences sur les solutions de plutonium est indiquée sur la figure 1 pour la cuve de diamètre 300 mm réfléchie par de l'eau ou par un réflecteur solide.

Pour les solutions d'uranium, la géométrie est la même, h cette différence près que dans le cas du réflecteur d'eau la table est toujours présente mais elle est en acier (tandis que dans les expériences au plutonium, elle est en duralumin). En outre, la cuve réflecteur est à fond plat.

A DIJON, les expériences ont porté sur des cylindres annulaires de diamètre intérieur 300 mm et de diamètre extérieur 500 mm, épaisseur des parois non comprise. Ces parois sont en acier inoxydable 18/8 d'une épaisseur moyenne de 3 mm, de sorte que la solution forme un cylindre annulaire dont l'épaisseur réelle est de 100 mm. Pour la série d'expériences sur un seul cylindre, il y a toujours un réflecteur extérieur : latéral et inférieur ; le réflecteur latéral ajusté au même niveau que la solution a une épaisseur minimale de 300 mm d'eau. Le réflecteur inférieur a une épaisseur minimale de 317 mm.

La cavité intérieure est soit remplie d'eau au même niveau que la solution, soit laissée à l'air, soit laissée à l'air mais avec une feuille de cadmium de 7/10 mm plaquée intérieurement.

Pour la série d'expériences sur deux réservoirs en interaction on retrouve les mêmes conditions de réflexion sauf pour les expériences d'interaction en semi réflexion où l'espace compris entre les deux réservoirs est laissé à l'air.

La figure 2 montre l'ensemble du dispositif expérimental, l'installation complète a été décrite dans [4] .

2

- TABLEAU I -

| Réf. | Conteneur | | Nature | -=-=-== Réf | lecteur | • Epaisse | | Figure n° |
|------|----------------------------------|-----------------------|------------------------|------------------|-----------|------------------|--------------------|--------------|
| Δ | 1 culindre Ø 30 | 0 | eau | | | 40 | | 3 |
| D D | T Cylindic p 90 | | baia | | | 10 | | 3 |
| | | | DOIS | | - | 40 | | 7 |
| C | - 50 | 0 | beton | | | 40 | | 2 |
| D | - 30 | 0 | eau | | | 20 | | د |
| E | - 30 | 0 | eau | | | 15 | | 3 |
| F | - 30 | 0 | néant | | | | | 4 |
| G | - 42 | 2 | eau | | | 15 | | 5 |
| н | - 42 | 2 | néant | | | | | 6 |
| I | - 42 | 2 | néant | | | | | 7 |
| | | | | Réf | lecteur | | Configu- ration | ÷ |
| | | | Intérieur | Extérieur | | | | |
| J | 1 cylindre 💋 30 annulaire | 0-50 | eau | eau | | | 22 | 8 |
| ĸ | - 30 | 0-50 | air | eau | | | 12 | 9 |
| L | - 30 | 0-50 | air + feuille Cd | eau | | | 32 | 10 |
| | , , | | <u>Intérieur</u> | <u>Extérieur</u> | Intérieur | <u>Extérieur</u> | | |
| М | 2 cylindres Ø30 30-50 annulai | 0 -5 0 ires | eau | eau | eau | eau | 2222 | 11 |
| N | - 30-50 30 | 0-50 | air | eau | air | eau | 1122 | 12 |
| 0 | - | | eau+Cd | eau | eau+Cd | eau | 4422 | 13 |
| P | _ | | air | 1/2eau* | air | 1/2eau | 1121 | 14 |
| Q | - | | air | eau** | air | eau | | 15 |

CARACTERISTIQUES GEOMETRIQUES

.

(1) Ce numéro de configuration correspond aux conventions adoptées dans la référence [4]

* Semi-réflexion

** Un seul cylindre rempli

Pour l'interprétation de ces différentes expériences, la géométrie utilisée dans les calculs a été quelque peu simplifiée et correspond aux figures 3 et 15. Le tableau I donne les références et résume les principales caractéristiques géométriques .

2) - Solutions

a) <u>Uranium</u> - C'est un uranium enrichi à 90 % en isotope 235. On a admis qu'il était en solution sous forme de nitrate d'uranyle $(NO_3)_2$ UO₂.

L'analyse des échantillons donne :

- la concentration en uranium total à + 1 %
- la densité à + 0,2%
- l'acidité libre à + 2,5%
- la teneur en fer à + 10 %

Les caractéristiques des solutions figurent sur le tableau II.

b) <u>Plutonium</u> - Pour les calculs sur les solutions de plutonium, nous avons utilisé, soit les résultats des analyses dans le cas où les solutions ont été analysées complètement (valeurs expérimentales), soit la formule empirique suivante en supposant que tout le plutonium est à la valence IV sous forme de (NO₃)₄ Pu :

D = 0,00147 C + 0,034 [H⁺] + d [5]

- D = Densité de la solution
- C = Concentration en plutonium total exprimé en g/litre
- $[H^+]$ = Acidité libre exprimée en normalité
- d = Densité de l'eau à la température considérée.

Cette formule détermine complètement la composition des solutions pour une concentration et une acidité données. A titre indicatif nous donnons dans le tableau III pour des couples de valeurs C et $[H^+]$ les valeurs expérimentales et calculées par cette formule, de la densité de la solution, de la normalité en NO $\frac{1}{3}$ et du rapport H/Pu total.

- TABLEAU II -

SOLUTIONS URANIUM

(Résultats d'analyse)

| Réf. | Concentra- tion Ura- nium total | -=-=-=- н/บ5 | Poids U 235 g/l | Poids U 238 g/l | (NO3) Total g/l | [H ⁺] g/l . | r=-=-=-== Fer mg/l | Densité |
|------|---------------------------------------|-----------------|-----------------------|-----------------------|---------------------------|----------------------------|--------------------------|---------|
| 1 | 69 | 393 | 62,07 | 6,19 | 165 | 2 | 6,9 | 1,156 |
| 2 | 70 | 387 | 62,95 | 6,28 | 164 | 2,03 | 10,5 | 1,161 |

,

- TABLEAU III -

| | Valeurs | =-=-=-=- a <u>expéri</u> | -=-=-=== imentales | <u>Vale</u> | Valeurs calculées | | |
|------------|-------------------|-----------------------------|-----------------------|-------------|-------------------|---------------------|-------|
| C Pu total | (H ⁺) | D | (N0 ₃) | H/Pu | D | (NO ⁻ 3) | H/Pu |
| g/l | N | Solution | total | total | solution | total | total |
| 42,3 | 2,02 | 1,137 | 2,8 | 588 | 1,129 | 2,73 | 586 |
| 52,6 | 2 | 1,154 | 2,88 | 474 | 1,144 | 2,88 | 469 |
| 60,5 | 2,03 | 1,166 | 3,01 | 410 | 1,156 | 3,04 | 405 |
| 70,8 | 2,08 | 1,183 | 3,21 | 349 | 1,173 | 3,27 | 344 |
| 80 | 2,11 | 1,201 | 3,35 | 309 | 1,188 | 3,45 | 302 |
| 94 | 2,15 | 1,220 | 3,59 | 260 | 1,210 | 3,72 | 255 |
| 104 | 2,2 | 1,240 | 3,7 | 236 | 1,226 | 3,94 | 229 |
| 104 | ۷,۷ | 1 # 240 | 2,1 | 236 | 1,220 | 3,94 | 229 |

Nous voyons que la formule utilisée donne des compositions de solutions très proches des compositions expérimentales, du moins pour des normalités en [H⁺] voisines de 2.

Dans le tableau IV figurent les compositions de solutions ainsi calculées ; cependant certaines d'entre elles sont des solutions réelles pour lesquelles la concentration C, l'acidité [H⁺] ont été déterminées par analyse. La teneur en fer indiquée résulte évidemment d'une analyse.

- TABLEAU IV -

| ۲=-=-=-= | <u> </u> | ~=-=-=-=· | r=-=-=-=- | r-=-=-=- | Ē-=-=- | Ŧ-=-=-=-= | - |
|----------|-----------------|---------------------|------------------------|--------------------|--------|-----------|----------|
| Réf. | Concentra- | ^{H/Pu} 239 | Teneur en Pu 240 en | (NO ₃) | [H+] | Fer | Densité |
| | total g/l | | % en poids | Total g/1 | g/1 | mg/l | |
| | | | | | | | |
| 3 | 18,8 * | 1359 | 1,48 | 143 | 2 * | 96 | 1,094 |
| 4 | 27 * | 941 | 1,48 | 155 | 2,04 * | 158 | 1,107 |
| 5 | 28,7 * | 883 | 1,48 | 151 | 1,96 * | 138 | 1,105 |
| 6 | 28,9 * | 877 | 1,48 | 153 | 1,99 * | 144 | 1,106 |
| 7 | 32,6 * | 775 | 1,48 | 157 | 1,98 * | 174 | 1,111 |
| 8 | 35 , 3 * | 714 | 1,48 | 161 | 2 * | 200 | 1,115 |
| 9 | 40 | 642 | 3,2 | 166 | 2 | | 1,125 |
| 10 | 41,2 * | 611 | 1,48 | 170 | 2,05.* | 176 | 1,129 |
| 11 | 43,6 * | 578 | 1,48 | 162 | 1,88 * | 160 | 1,125 |
| 12 | 44,7 * | 561 | 1,48 | 174 | 2,06 * | 190 | 1,132 |
| 13 | 47 * | 535 | 1,48 | 170 | 1,95 * | 216 | 1,134 |
| 14 | 50 | 642 | 3,2 | 176 | 2 | | 1,140 |
| 15 | 57 , 4 * | 434 | 1,48 | 185 | 2,02 * | 224 | 1,151 |
| 16 | 60 | 423 | 3,2 | 186 - | 2 | | 1,155 |
| 17 | 6 1 * | 411 | 1,48 | 149 | 1,38 * | 270 | 1,128 |
| 18 | 70 | 360 | 3,2 | 197 | 2 | | 1,128 |
| 19 | 76 * | 326 | 1,48 | 159 | 1,30 * | 340 | 1,144 |
| 20 | 80 | 313 | 3,2 | 207 | 2 | | 1,184 |
| 21 | 90 | 277 | 3,2 | 217 | 2 | | 1,199 |
| 22 | 100 | 248 | 3,2 | 228 | 2 | | 1,213 |
| 1 | 1 | 1 | | | | | |

* Valeurs déduites d'analyse - Ces valeurs sont données à \pm 1 % pour les concentrations en plutonium et à \pm 2 % pour les acidités.

Le tableau V donne les compositions de solutions analysées complètement avec les précisions suivantes :

| - | Concentration en plutonium | à | <u>+</u> | 2 % |
|---|--|---|------------|-------|
| - | Densité de la solution | à | <u>+</u> | 0,1 % |
| - | Normalité [H ⁺] | è | <u>+</u> | 2 % |
| - | Normalité $\left[NO_{\overline{3}}^{-} \right]$ | à | <u>+</u> | 1 % |
| - | Concentration en fer | à | <u>+</u> . | 10 % |

- TABLEAU V -

SOLUTIONS PLUTONIUM (Résultats d'analyses)

| Réf. | Concentra- tion Pu total g/l | H/ _{Pu} 239 | Teneur en Pu 240 en % en poids | (N03) Total g/1 | [H ⁺] g/l | -= | Densité |
|--|--|--|---|--|--|---|--|
| 23 24 25 26 27 28 29 30 | 40,6 42,3 52,6 56,1 60,5 70,8 74,2 80 | 625 607 489 454 424 360 340 319 | 2,98 3,2 3,2 2,98 3,2 3,2 2,98 3,2 | 193 174 179 203 187 199 228 208 | 2,23 2,02 2,27 2,03 2,08 2,38 2,38 | 330 200 200 380 220 260 470 | 1,143 1,137 1,154 1,173 1,166 1,183 1,206 1,201 |
| 31 32 | 94 | 269 244 | 3,2 3,2 | 223 229 | 2,15 | 310 370 | 1,222 |

Le plutonium utilisé pour les expériences sur cylindres pleins (ALECTO) contenait 1,48 % de Pu 240 et celui utilisé pour les expériences sur cylindres annulaires 3,0 % environ .

7

- II - RESULTATS

L'interprétation a été faite à l'aide de plusieurs méthodes essentiellement pour deux raisons, d'une part la méthode doit être compatible avec la géométrie, d'autre part il importait d'éprouver la validité de certaines méthodes susceptibles de plus larges applications.

1) - Diffusion

La théorie de la diffusion a été utilisée pour interpréter les expériences sur les cylindres pleins et les expériences sur un seul cylindre annulaire, dans le cas où la cavité centrale est remplie d'eau. On a utilisé le code de diffusion ALCI [6] et les problèmes ont été traités en géométrie RZ. Les calculs ont été faits avec 2 groupes ou 4 groupes d'énergie. Pour les calculs à 2 groupes les constantes adoptées figurent dans le rapport CEA Nº 2453. Pour les calculs à 4 groupes on a pris des sections efficaces correspondant au découpage suivant :

| - | ler | groupe | rapide | 10 | à | 0,821 | MeV |
|---|------|--------|-----------|-------|---|-------|-----|
| - | 2ème | groupe | - | 821 | à | 5,5 | keV |
| - | 3ème | groupe | - | 5.500 | à | 0,625 | еV |
| - | 4ème | groupe | thermique | 0,625 | à | 0 | eV |

Les sections efficaces correspondant aux 3 groupes rapides sont fournies directement par le programme MUFT 4bis (7) à partir de sections efficaces à 64 groupes ; ce programme donne des sections pondérées sur un spectre rapide, en tenant compte des fuites de neutrons par l'intermédiaire d'un laplacien géométrique moyen calculé pour les 3 groupes rapides.

Les sections efficaces correspondant au groupe thermique ont été obtenues par le programme SOFOCATE [8], c'est-à-dire dans le cadre des hypothèses de Wigner et Wilkins.

La longueur d'extrapolation a été prise constante et égale à 2,5 cm (coeur et réflecteur).

Pour les cylindres pleins, on a calculé le keff à partir de la hauteur critique expérimentale, le tableau VI résume tous les résultats obtenus (2 et 4 groupes).

- TABLEAU VI -

| Réf. | Concentration g/l | -=-=-=-=-=- Hauteur | critique | Masse g | e cr de | itique Pu | Nbre de groupes | Keff |
|--|--|--|-------------------------------|---|---|--|--|---|
| A 7. A 12 B 5 B 11 C 4 C 13 D 12 | 32,6 44,7 28,7 43,6 27 47 44,7 | 41,15 31,20 51,95 33,65 49 30,65 31,20 | 0,05 - - - - - | 916 951 1021 1001 905 981 951 | + | 12 12 13 14 12 15 12 | 2 2 2 2 2 2 2 2 2 4 | 1,00334 0,99535 1,00643 1,01097 1,00829 1,00110 0,99136 |

RESULTATS DES CALCULS SUR CYLINDRES "PLEINS"

Dans le cas des cylindres annulaires, on a déterminé les hauteurs critiques (4 groupes),les résultats sont résumés dans les tableaux VII et VIII et la figure 16 tant en ce qui concerne les calculs portant sur les solutions analysées que les calculs de prévision portant sur des solutions dont la concentration a été fixée a priori. Dans ce dernier cas, les hauteurs expérimentales données en comparaison ont été interpolées et ramenées aux valeurs des concentrations choisies pour les calculs .

- TABLEAU VII -

RESULTAT DES CALCULS SUR CYLINDRE ANNULAIRE

(SOLUTIONS ANALYSEES)

4 GROUPES

| Réf. | Concentrations | Valeurs o expérin | ritiques mentales | Valeurs critiques calculées | | |
|------|----------------|----------------------|----------------------|--------------------------------|-----------------------|--|
| | g/l | Hauteur cm | Masse Pu kg | Hauteur cm | Masse Pu <u>kg</u> | |
| J 27 | 60,5 | 85 | 6,45 | 78,19 | 5,94 | |
| J 28 | 70,8 | 62,87 | 5,58 | 62,5 | 5,56 | |
| J 30 | 80 | 54,02 | 5,42 | 53,04 | 5,33 | |
| J 31 | 94 | 48 | 5,68 | 47 | 5,55 | |
| J 32 | 104 | 45 | 5,88 | 43,5 | 5,68 | |
| | | | | | | |

- TABLEAU VIII -

RESULTAT DES CALCULS SUR CYLINDRE ANNULAIRE

(SOLUTIONS CALCULEES)

| -=-=-= |]-=-=-=-=-=-=-=-=-=-=- | | | | | |
|--------|------------------------|------------------------------------|----------------|-------------------|----------------|--|
| | | Valeurs c | ritiques | Valeurs critiques | | |
| Réf. | Concentrations g/l | expérimentales interpolées calculé | | | ées | |
| | | Hauteur cm | Masse Pu kg | Hauteur cm | Masse Pu kg | |
| | | | | | | |
| J 16 | 60 | 85 | 6,40 | 75,74 | 5,71 | |
| J 18 | 70 | 63 | 5,54 | 60 ,76 | 5,34 | |
| J 20 | 80 | 54 | 5,43 | 52,23 | 5,25 | |
| J 21 | 90 | 49,4 | 5,59 | 48 | 5,43 | |
| | | <u> </u> | | | | |

On peut remarquer, dans les deux tableaux précédents, que les valeurs trouvées vont dans le sens de la sécurité, l'écart par rapport aux résultats expérimentaux étant en moyenne de 5 % sur la hauteur. Il est cependant supérieur pour les points J 27 et J 16, mais dans ces cas, la hauteur expérimentale a été déduite par une approche lointaine (hauteur atteinte 74,37 cm).

Les temps de calcul sur IBM 7094, sont de l'ordre de 5 mn en moyenne pour les calculs de prévision avec un maillage de $22 \times 26 = 572$ points, et de l'ordre de 15mn pour les calculs faits avec des solutions analysées et avec un maillage de 25 x 37 = 925 points. Cette différence de maillage explique sans doute les écarts observés dans les deux séries de calcul.

2) - <u>Transpor</u>t

Un certain nombre d'expériences sur cylindres pleins a été interprété également par la théorie du transport principalement pour s'affranchir des incertitudes provenant des longueurs d'extrapolation. On a utilisé le code TDC [9] (Géométrie RZ) dans l'approximation S4, avec 4 groupes d'énergie. Le découpage en énergie est identique à celui précédemment adopté dans la théorie de la diffusion et les sections efficaces sont obtenues de la même façon.

Selon les cas, on a déterminé la hauteur ou le keff. Le tableau IX résume les résultats.

- TABLEAU IX -

| Réf. | Concentration Hauteur Mass g/l Critique cm critiq g de | | Masse critique g de Pu | Hauteur calculée cm | Keff calculé |
|----------------------------|--|----------------------------------|--|------------------------|--------------------|
| A 6 A 8 D 12 I 17 | 28,9 35 ,2 5 44,7 61 | 49,55 37,95 31,20 20,64 | 980 ± 13 914 ± 12 951 ± 12 1671 ± 23 | 52,27 36,25 | 1,01159 0,98268 |

RESULTAT DES CALCULS SUR CYLINDRES PLEINS

Les expériences sur un seul cylindre annulaire avec cavité laissée à l'air et doublée ou non de cadmium ont été interprétées par la théorie du transport et toujours avec le code TDC dans l'approximation S4. Les sections efficaces ont été obtenues de la même façon que précédemment, une recherche systématique de la hauteur critique a été faite. Les tableaux X et XI et la figure 16 donnent les résultats de calcul sur les solutions analysées et sur les solutions calculées.

.---

- TABLEAU X -

RESULTATS DES CALCULS SUR CYLINDRES

ANNULAIRES

| (| SOLUTIONS | ANALYSEES) |
|---|-----------|------------|

| =-= | Concentration | Valeurs | critiques | Valeurs critiques | | |
|------|----------------|----------------|-------------|-------------------|-------------|--|
| TCT. | JOUCEULT GLION | expéri | mentales | calculées | | |
| | g/l | Hauteur cm | Masse Pu Kg | Hauteur cm | Masse Pu kg | |
| | | | | | | |
| K 24 | 42,3 | 69 ,2 3 | 3,68 | 70,96 | 3,77 | |
| K 25 | 52,6 | 54,61 | 3,61 | 53,87 | 3,56 | |
| K 27 | 60,5 | 48,67 | 3,70 | 48,94 | 3,72 | |
| K 28 | 70,8 | 44,58 | 3,96 | 45,43 | 4,04 | |
| K 30 | 80 | 42,08 | 4,22 | 42,49 | 4,27 | |
| K 31 | 94 | 39,97 | 4,72 | 40,94 | 4,83 | |
| K 32 | 104 | 38,78 | 5,07 | 39,79 | 5,20 | |
| L 25 | 52,6 | 68,48 | 4,52 | 66,32 | 4,38 | |
| L 27 | 60,5 | 57,94 | 4,4 | 57,64 | 4,38 | |
| L 28 | 70,8 | 51,23 | 4,55 | 50,97 | 4,53 | |
| L 30 | 80 | 47,24 | 4,74 | 46,0 | 4,62 | |
| L 31 | 94 | 44,20 | 5,22 | 42,95 | 5,07 | |
| L 32 | 104 | 42,6 | 5,58 | 43,27 | 5,65 | |
| | | | | | | |

- TABLEAU XI -

RESULTATS DE CALCULS SUR CYLINDRES ANNULAIRES

SOLUTIONS CALCULEES

| -=-=- Réf. | Concentration | Valeurs critiques expérimentales interpolées | | Valeurs critiques Calculées | |
|---------------|---------------|---|-------------|--------------------------------|-------------|
| | g/l | Hauteur cm | Masse Pu kg | Hauteur cm | Masse Pu kg |
| K 9 | 40 | 73,6 | 3,70 | 75,86 | 3,81 |
| K 14 | 50 | 57 | 3,58 | 57,74 | 3,63 |
| K 16 | 60 | 49 | 3,69 | 49,55 | 3,73 |
| K 18 | 70 | 44,6 | 3,92 | 44,57 | 3,92 |
| K 21 | 90 | 40,4 | 4,57 | 40,73 | 4,61 |
| K 22 | 100 | · 39 ,2 | 4,93 | 40,4 | 5,07 |
| L 14 | 50 | 72,8 | 4,57 | 75,78 | 4,76 |
| L 16 | 60 | 58 | 4,37 | 60,34 | 4,55 |
| L 18 | 70 | 51 | 4,49 | 54,53 | 4,79 |
| L 21 | 90 | 14,8 | 5,06 | 47,88 | 5,41 |
| | | | | | |

Les temps de calcul sur IBM 7094 sont évidemment plus longs qu'en théorie de la diffusion, ils varient de 20 mn à 45 mn selon les cas et le choix plus ou moins judicieux des valeurs d'essais.

Dans les calculs sur solutions analysées, on a adopté un maillage de 13 x 22 = 286 points en configuration K et 16 x 25 = 400 points en configuration L.

Pour les calculs de prévision, le maillage adopté est de 14 x 14 = 196 points en configuration K et 15 x 17 = 255 points en configuration L.

3) - Monte-Carlo

Lorsque les problèmes rencontrés dans le domaine de la criticité présentent une géométrie complexe, leur étude par les théories de la diffusion et du transport nécessite des simplifications de façon à les ramener à une ou deux dimensions. Ces approximations qui doivent toutes être prises dans le sens de l'augmentation de la réactivité conduisent souvent à des surestimations excessives et inadmissibles. La méthode de Monte-Carlo utilisée pour déterminer la réactivité des systèmes multiplicateurs a l'avantage de pouvoir résoudre les systèmes complexes avec une grande fidélité géométrique [10]. Elle trouve donc en criticité un large domaine d'emploi; nous l'avons éprouvée sur certaines des expériences précédentes.

La méthode de Monte-Carlo employée utilise dans le domaine épithermique des sections efficaces d'origine anglaise [AWRE 02860], et un découpage en énergie assez fin (128 groupes), mais les neutrons thermiques sont traités avec un seul groupe et des sections efficaces adaptées.

Etant donné les temps de calcul par cas (20 à 30 mn sur ordinateur IBM 7094 suivant la concentration et la géométrie) il n'a pas été possible d'étudier toutes les expériences faites. Certaines ont été sélectionnées de facon à obtenir des résultats pour des géométries très différentes et des concentrations variées.

La géométrie adoptée pour chaque type de calcul est représentée sur les figures 3 à 12.

Pour le milieu fissile, l'ensemble des sections efficaces thermiques a été fourni par le code SOFOCATE [8] . Pour les autres milieux, réflecteurs et parois, on a utilisé des sections efficaces thermiques constantes, indépendantes du spectre.

Dans la méthode de Monte-Carlo, utilisée, les résultats sont directement donnés en facteur de multiplication effectif et le calcul se fait par génération. On pourrait donc craindre que l'équilibre ne soit atteint qu'après un temps de calcul assez long. Pour étudier ce point, on a fait la somme des résultats pour l'ensemble des cas calculés, puis on a successivement retranché un certain nombre d'étapes initiales. Comme le montrent les nombres suivants, pour l'ensemble des configurations étudiées, il semble que l'équilibre soit atteint rapidement, car les différences sont toutes dans les limites d'erreur.

14

| 0,99792 | <u>+</u> | 300 pcm | Moyenne | pour | l'ensemble | des | cas | - Cylindres annulaires |
|-----------------|----------|---------|---------|------|------------|-----|-----|--------------------------|
| 0,9999 2 | <u>+</u> | 305 pcm | - | - | - | - | - | en retranchant 10 étapes |
| 1,00103 | <u>+</u> | 310 pcm | - | - | - | - | - | en retranchant 20 étapes |
| 0,99998 | + | 315 рст | - | - | - | - | - | en retranchant 30 étapes |
| 0,99773 | + | 320 pcm | - | - | - | - | - | en retranchant 40 étapes |

Dans les tableaux XII (uranium) et XIII (plutonium), nous indiquons chaque configuration étudiée avec le résultat du calcul. L'erreur reportée résulte d'une étude de la variance et correspond à une probabilité de 84%.

·

- TABLEAU XII -

| Réf. | Géométrie | | Concentration | Facteur de multipli- cation |
|------|----------------|---|---------------|--------------------------------|
| F 2 | Cylindre plein | 4 | 70 | 1,00380 <u>+</u> 0,01200 |
| F 1 | - | 3 | 69 | 0,99494 <u>+</u> 0,01300 |

RESULTATS POUR SOLUTIONS URANIUM

.

- TABLEAU XIII -

_

| Réf. | =-=-=-=-=-=-=-=-=-=- Géométrie | Figure | Concentration g/l | Facteur de multipli- cation |
|------|---|--------|----------------------|--------------------------------|
| E 12 | Cylindre plein | 3 | 44,7 | 0,99883 <u>+</u> 0,01200 |
| H 3 | - | 6 | 18,8 | 0,98290 + 0,01200 |
| H 10 | - | 6 | 41,16 | 0,99395 <u>+</u> 0,01200 |
| H 15 | - | 6 | 57,4 | 0,98383 <u>+</u> 0,01200 |
| K 24 | 1 cylindre annu- laire | 9 | 42,3 | 1,00140 + 0,01000 |
| K 28 | - | 9 | 70,8 | 1,00420 + 0,01200 |
| K 32 | - | 9 | 104 | 0,99182 + 0,01300 |
| J 28 | - | 8 | 70,8 | 1,00417 <u>+</u> 0,01200 |
| J 31 | - | 8 | 94 | 1,01226 <u>+</u> 0,01300 |
| L 31 | - | 10 | 94 | 1,00329 <u>+</u> 0,01400 |
| N 23 | 2 cylindres annu- laires, distance 0.4 cm | 12 | 40,6 | 1,00063 <u>+</u> 0,01200 |
| N 23 | - 14,4 cm | 12 | 40,6 | 1,00023 <u>+</u> 0,01200 |
| N 26 | - 1,05cm | 12 | 56,1 | 1,00533 ± 0,01000 |
| N 26 | - 12,4 cm | 12 | 56,1 | 0,98127 <u>+</u> 0,01200 |
| 0 26 | 2 cylindres annu- laires, distance 1 cm | 13 . | 56,1 | 0,98871 <u>+</u> 0,01200 |
| P 29 | 2 cylindres annu- laires, distance 2.99cm | 14 | 74,2 | 0,98220 <u>+</u> 0,01400 |
| Q 29 | 2 cylindres annu- laires, distance 134 cm | 15 | 74,2 | 0,99047 <u>+</u> 0,01200 |
| M 26 | 2 cylindres annu- laires, 4,4 cm | 11 | 56,1 | 1,00496 <u>+</u> 0,01200 |

L'ensemble des résultats pour le plutonium est reproduit sur la figure 17 pour diverses configurations, en fonction de la concentration. Il n'apparaît pas de différences systématiques dues à la concentration dans le domaine étudié. Les keff calculés sur les cylindres pleins en l'absence de réflecteurs sont un peu inférieurs à l'unité (1,5 %). Cela peut être dû à quelques réflexions par des parois non considérées dans les calculs.

Les temps de calcul sont évidemment assez longs, 20 à 30 minutes pour une précision de l'ordre de 1,2 % sur le keff, mais il est bon de remarquer que pour obtenir un ordre de grandeur, par exemple à 5 % près avec le même degré de confiance, il ne faut plus que 2 mm environ. - CONCLUSION -

Dans l'interprétation des expériences en milieu homogène au moyen des théories de la diffusion et du transport, on se heurte aux difficultés suivantes :

Du choix du maillage dépendent, d'une part le temps de passage en machine, et d'autre part la précision des résultats. Il faut donc choisir un maillage juste assez fin pour que les erreurs de calcul dues à ce maillage restent toujours inférieures aux erreurs expérimentales. L'effet de ce maillage est évidemment obtenu en traitant un même cas avec des mailles de plus en plus serrées. Dans les calculs de prévision, on a utilisé un maillage assez grossier.

La plupart des calculs ont été faits avec un partage en 4 groupes d'énergie. Il intervient dans la pondération des sections efficaces, des laplaciens géométriques calculés par groupes, permettant dans une certaine mesure de tenir compte des fuites et dont l'influence sur les sections efficaces rapides est importante. Lorsque ce laplacien ne pouvait être évalué du fait de la géométrie trop complexe, nous l'avons remplacé par le laplacien matière.

Pour conserver des temps de calcul acceptables, on a pris l'approximation S4. D'après les résultats publiés par Carlson, ceci ne devrait pas introduire une erreur supérieure à 0,2 % sur les dimensions critiques. Enfin une estimation de la précision de la convergence a été faite en calculant pour différents cas, la hauteur critique d'une part et le coefficient de multiplication correspondant à cette hauteur d'autre part, ces imprécisions de calcul ont été trouvées très faibles (inférieures à 50 pcm).

Dans l'interprétation des expériences par la méthode de Monte-C_arlo, on rencontre une toute autre difficulté du fait que la précision du calcul est évidemment inversement proportionnelle à la racine carrée du temps de calcul, cela interdit d'évaluer par cette voie des effets fins, c'est-à-dire avant une faible incidence sur la réactivité.

Il est bien difficile de faire une comparaison des temps de calcul entre théorie du transport et théorie de Monte-Carlo. Les facteurs qui jouent ne sont pas les mêmes dans les deux méthodes : les codes de transport conduisent à des temps de calcul longs pour des systèmes ayant de fortes discontinuités de sections efficaces dans les différents milieux alors que les temps de calcul en méthode de Monte-Carlo sont plus longs pour les systèmes comportant des milieux où la multiplication moyenne par choc est proche de l'unité. En ce qui concerne la précision, les causes d'erreur ne sont pas de même nature : en théorie du transport, elles sont dues au nombre réduit de groupes d'énergie et aux sections efficaces utilisées ; en Monte-Carlo, il s'agit plutôt d'une imprécision liée au temps de calcul. En fait, les deux méthodes sont essentiellement complémentaires pour l'interprétation de ce type d'expériences.

18

D'après l'examen des résultats acquis, pour le plutonium et dans le domaine des concentrations expérimentées (jusqu'à 104 g), on peut espérer obtenir, par l'une quelconque des méthodes compatibles avec la géométrie étudiée, le coefficient de multiplication effectif avec une précision meilleure que 2 %.

- REFERENCES -

- 1 D. BRETON, P. LECORCHE, C. CLOUET D'ORVAL. Etudes de criticité, conférence de GENEVE 1964 -
- 2 J.G. BRUNA, J.P. BRUNET; C. CLOUET D'ORVAL, J. KREMSER, P. VERRIERE, R. CAIZERGUES, J. LECLERC – ALECTO : Expériences de criticalité sur une solution de plutonium – Résultats expérimentaux – cuve nº 1 ($\phi = 324$ mm) Rapport CEA Nº 2274 –
- 3 J.G. BRUNA, J.P. BRUNET, C. CLOUET D'ORVAL, J. KREMSER, ALECTO 1 Expérience de criticité sur une solution de Pu et d'uranium enrichi à 90 % – Résultats expérimentaux et calculs concernant la cuve n° 2 (ϕ = 300 mm.⁻) Rapport CEA 2453.
- 4 E. DEILGAT, M. HOUELLE, M. MOLBERT, A. SAUVE. Expériences de criticité sur des cylindres annulaires contenant des solutions de plutonium -Rapport CEA 2495.
- 5 J. P. GUIBERGIA Densité des solutions nitriques de plutonium -Rapport STCI Nº 123.
- 6 Code ALCI J. BAYARD, A. GUILLOU, B. LAGO, M.J. BUREAU du COLOMBIER,
 G. GUILLOU, C. VASSEUR Spécifications d'un code de diffusion multigroupe à 2 dimensions ALCI - Rapport SCEA 131.
- 7 H. BOHL Jr, E.M. GELBARD, G.H. RYAN MUFT 4 Fast neutron spectrum code for the IBM 704 WAPD TM 72.
- 8 SOFOCATE The calculation of thermal constants averaged over a Wigner
 Wilkins flux spectrum : description of the SOFOCATE code WAPD TM 39 -
- 9 B. CARLSON, C. LEE, J. WORLTON. The DSN and TDC neutron transport code LAMS 2346.
- 10 J. MOREAU et al Méthode de Monte-Carlo Rapport CEA (à paraître)

Manuscrit reçu le 18 juin 1964

•

LISTE DES FIGURES

Figure 1 - Alecto I (coupe) Figure 2 - Ensemble des expériences sur cylindres annulaires Figure 3 - Cuve Ø 300 réfléchie : eau, bois, béton Figure 4 - Cuve Ø 300 nue Figure 5 – Cuve ϕ 420 réfléchie : eau Figure 6 - Cuve ϕ 420 nue avec support aluminium Figure 7 - Cuve Ø 420 nue Figure 8 - Cylindre annulaire : configuration (22) Figure 9 - Cylindre annulaire : configuration (12) Figure 10 - Cylindre annulaire : configuration (32) Figure 11 -2 cylindres annulaires: configuration (2222) Figure 12 -2 cylindres annulaires: configuration (1122) Figure 13 -2 cylindres annulaires: configuration (4422) Figure 14 -2 cylindres annulaires.semi réflexion: configuration (1121) Figure 15 -2 cylindres annulaires.1 seul plein.Influence du cylindre vide Figure 16 cylindre annulaire isolé (500x300)-Hauteurs critiques en fonction de la concentration Figure 17 -Résultats pour le Plutonium- différentes

configurations



EXPERIENCES sur les CYLINDRES ANNULAIRES

I - CYLINDRE ISOLE



II - CYLINDRES EN INTERACTION





- Fig. 2 -

A 02

.

Figure 3



1



Figure 4







Figure 6



. . 414 ø ¢ '420 አ Sol ž .

.

Figure 7

Figure 8



D 10

Figure 9



D08



D08.







D 13.





D 19



D 20







Т



- Fig. 16 -



Vente et diffusion à :

La Documentation Française Secrétariat Général du Gouvernement Direction de la Documentation 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème - Tél. ELY. 82-00 Edité par le Service de Documentation du C.E.A. Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay Boîte Postale n° 2 - GIF-sur-YVETTE (S.-et-O.) France.