

Des sels fondus pour la 4^e génération de réacteurs nucléaires ?

Elsa Merle (merle@lpsc.in2p3.fr), **Michel Allibert**, **Daniel Heuer**^(*) et **Axel Laureau**

Laboratoire de Physique Subatomique et Cosmologie (CNRS/IN2P3 et Université Grenoble Alpes)

53 Avenue des Martyrs, 38026 Grenoble Cedex

(*) Lauréat du Grand prix Clément Codron 2022 de l'Institut de France pour ses travaux sur les réacteurs nucléaires à sels fondus.

Pour pouvoir lutter significativement contre le changement climatique, un recours massif à l'énergie nucléaire est indispensable. Cela requiert de gérer en amont les risques liés au nucléaire ainsi que son acceptabilité sociétale.

La production nucléaire devra aussi pouvoir assurer le suivi de charge d'un parc comportant une grande part d'énergies renouvelables.

Cet article présente et discute une nouvelle filière à la hauteur de ces enjeux : les réacteurs à combustible liquide, dits à sels fondus, qui rencontrent un intérêt grandissant. On expose ici les développements effectués en France avec le concept MSFR (réacteur à sel fondu en spectre neutronique rapide) du CNRS, qui offre des perspectives pour l'incinération des transuraniens et l'aide à la gestion des sources intermittentes d'énergie.

Critères d'évaluation d'un réacteur nucléaire du futur

Trois critères d'évaluation, directement reliés à la question de l'acceptabilité sociétale d'une telle filière peuvent être définis : la sûreté, la gestion des déchets et son rôle en accompagnement du déploiement des énergies renouvelables intermittentes.

Pour que le public accepte un nouveau développement du nucléaire, il faut non seulement qu'aucun accident ne puisse entraîner d'évacuation de population, mais aussi que cela soit rendu crédible pour le public en éliminant tous les risques de sur-accidents. Il est en effet impossible

d'éviter qu'un accident puisse se produire suite à une erreur humaine ou à une catastrophe naturelle. Il est donc important que la configuration du réacteur assure qu'un tel accident ne puisse pas dégénérer par effet domino. Par exemple, dans un réacteur à eau pressurisée (REP) il serait préférable de rendre impossible la production d'hydrogène plutôt que de mettre en place des systèmes d'absorption de l'hydrogène produit. Plus généralement, les nouveaux réacteurs devront présenter une sûreté intrinsèque, ce qui permettra en outre une réduction des coûts.

Il sera également nécessaire de réduire la quantité de déchets radioactifs produits ainsi que la

durée nécessaire de leur stockage. Pour cela, il est indispensable que les seuls déchets hautement radioactifs ne soient que les produits de fission (qui sont incontournables) les moins radiotoxiques et dont l'activité tombe en dessous de l'activité naturelle du combustible après seulement quelques centaines d'années. Cela impose de mettre en place un recyclage du combustible, ce qui améliorera dans le même temps la sobriété du procédé. Il faudra donc faire appel à un des deux cycles surgénérateurs^(a) qui ont l'avantage de ne consommer qu'une tonne par GW_{el} et par an d'uranium naturel ou de thorium au lieu de 150 à 200 tonnes pour le cycle actuel.

Enfin, le déploiement tout aussi important de modes de production énergétique intermittents prévu par la majorité des scénarios impose également à ces nouveaux réacteurs un rôle d'effacement de l'intermittence. Ils devront donc être très flexibles dans leur fonctionnement et pilotables rapidement sur une grande gamme de puissance.

Intérêt des combustibles liquides

Dès les années 1960, les ingénieurs de l'ORNL (Oak Ridge National Laboratory aux USA) avaient découvert qu'indépendamment du type de réacteurs, l'utilisation d'un combustible liquide servant aussi bien de modérateur que de fluide caloporteur, a un grand potentiel en matière de sûreté intrinsèque et de pilotabilité. Ces combustibles présentent de multiples caractéristiques très intéressantes.

- 1• La chaleur de fission est déposée directement dans le fluide caloporteur pour être transportée hors du cœur en quelques secondes (pour un combustible solide, elle doit d'abord transiter par diffusion à l'intérieur des crayons combustibles). La disparition de ce délai permet aux contre-réactions thermiques d'agir très tôt, ce qui stabilise fortement le réacteur. Cette caractéristique permet aussi des variations rapides de puissance.
- 2• Lors d'une augmentation accidentelle de réactivité, la puissance augmente très rapidement et provoque un échauffement important du combustible. Si ce dernier est liquide, il se dilate et sort en partie

de la zone neutroniquement très active : il devient alors légèrement plus transparent aux neutrons, ce qui diminue la réactivité et ramène le réacteur dans son état nominal. On montre, par des simulations numériques et expérimentalement sur un réacteur critique à combustible liquide tel que le réacteur SILENE [1], qu'un accident de type Tchernobyl devient alors impossible.

- 3• Dans une situation hors de contrôle, le combustible liquide peut être évacué du cœur du réacteur en quelques minutes, sans pompes et par la simple ouverture d'une bonde d'écoulement. Le combustible, qui continue à chauffer à cause de sa puissance résiduelle, sera alors refroidi passivement en toute sécurité dans un réservoir de vidange d'urgence. Une situation de type Fukushima peut alors être gérée même sans intervention d'un opérateur, le réacteur se mettant automatiquement en attente d'un redémarrage dans les semaines ou mois suivant l'accident.

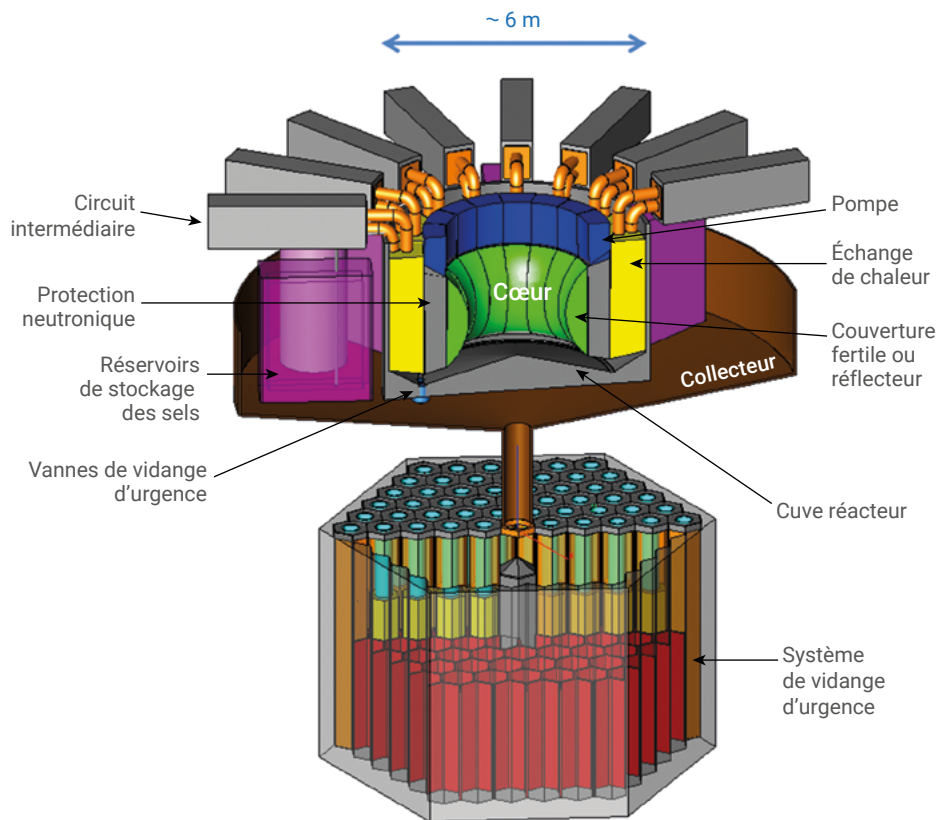
- 4• L'état liquide du combustible permet des ponctions et ajouts de celui-ci sans arrêter le réacteur. Il est alors possible de s'assurer de l'absence d'excès de réactivité et donc d'éliminer tout risque lié à celui-ci.
- 5• Une augmentation accidentelle de la réactivité par densification du combustible est impossible puisque le combustible liquide est incompressible.
- 6• L'état liquide du combustible évite d'avoir à construire et déconstruire des assemblages qui peuvent se révéler fragiles et complexes à refroidir dans le cas de son multirecyclage.
- 7• Les actinides mineurs, actuellement considérés comme déchets, pourraient être utilisés dans ces combustibles qui ne nécessitent pas la fabrication de pastilles et d'assemblages.
- 8• Le combustible est homogène, car brassé constamment en passant dans des échangeurs de chaleur : cela rend inutiles les plans de chargement complexes indispensables pour un combustible solide.

>>>

Photo du domaine public, Source HD 68.477, Auteur : ENERGY.GOV



Modèle réduit (échelle 1/6) du "Molten Salt Reactor Experiment" (MSRE) d'Oakridge (USA). Le MSRE a divergé le 1^{er} juin 1965, et a atteint sa pleine puissance (7500 kW) en mai 1966.



1. Géométrie intégrée du MSFR,

>>>

Actuellement, ces avantages ne sont toutefois que potentiels : seul un choix judicieux du type de liquide et de la configuration du réacteur permet de les concrétiser.

Choix du combustible liquide

Toujours indépendamment de la configuration du réacteur utilisé, un bon liquide doit respecter plusieurs critères allant de la transparence aux neutrons à la non-production de radio-isotopes gênants, en passant par des propriétés physico-chimiques adaptées pour l'évacuation de la chaleur, la stabilité en fonctionnement, la solubilité des éléments du combustible et leur retraitement. Les sels ioniques (fluorures ou chlorures) permettent de respecter ces critères : on parle alors de « Réacteurs à Sels Fondus » ou RSF (« Molten Salt Reactor » ou MSR en anglais).

Le fluor possède plusieurs résonances de diffusion inélastique des neutrons de quelques centaines de keV, ce qui réduit très fortement le

nombre de neutrons à ces énergies. En conséquence, le flux neutronique endommage beaucoup moins les matériaux de structure, mais pénalise fortement le cycle uranium-plutonium qui a besoin de ces neutrons énergétiques pour assurer une bonne régénération des noyaux fissiles. Les fluorures sont donc plutôt adaptés pour le cycle thorium-uranium. Dans ce cas, le meilleur solvant est le fluorure de lithium LiF, avec un eutectique de fusion à 585°C pour environ 22 % d'actinides. Il est nécessaire d'utiliser du lithium enrichi à plus de 99,9 % en ^7Li , car l'isotope ^6Li a une section efficace de capture neutronique très importante et produit trop de tritium.

Pour utiliser des chlorures, il faut un enrichissement à plus de 99,9 % en isotope ^{37}Cl . En effet, le chlore naturel contient 75,77 % de ^{35}Cl produisant, par capture neutronique, du ^{36}Cl radioactif avec une période de 301 000 ans, ce qui le rend impossible à stocker. Ces chlorures sont bien adaptés au cycle U-Pu, malgré un spectre neutronique endommageant

plus les matériaux de structure. Le meilleur solvant est alors le chlorure de sodium NaCl, avec 38 % d'actinides et une température de fusion de l'eutectique d'environ 450°C.

Historique des réacteurs à sels fondus

Deux réacteurs à sels fondus ont déjà fonctionné par le passé à l'ORNL [2]. En 1954, l'armée de l'air américaine souhaitant disposer d'un avion à propulsion nucléaire, un petit réacteur à sels fondus d'une puissance thermique de 2,5 MW_{th}, l'Aircraft Reactor Experiment (ARE) a été testé au sol pendant une centaine d'heures. Ce type de réacteur était en effet compact et permettait les amples variations de puissance sur des temps courts nécessaires pour un avion. Ce test montra qu'un combustible nucléaire liquide est relativement simple à mettre en œuvre, mais que les sels fluorés corrodait excessivement les matériaux de structure.

Les physiciens de l'ORNL construisirent ensuite le « Molten Salt Reactor Experiment » (MSRE, voir la photo p. 99), où l'utilisation d'un alliage à base de nickel, l'Hastelloy-N, résolut les problèmes de corrosion. Ce réacteur fonctionna pendant cinq ans avec une puissance nominale de 8 MW_{th}. Il avait un spectre d'énergie neutronique thermique, grâce à une matrice de graphite dans laquelle circulait le sel fondu. Le MSRE utilisa trois types de matériaux fissiles différents : de l'uranium enrichi, de l'uranium 233 et du plutonium ; toutefois, il n'a jamais contenu suffisamment de matière fertile pour régénérer son combustible et n'a jamais été chargé en thorium. Des essais de variation de puissance du MSRE ont démontré avec succès les excellentes capacités de suivi de charge de ce type de réacteur.

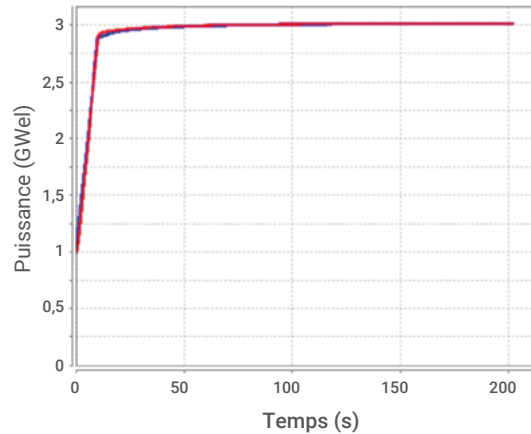
Le projet suivant, le « Molten Salt Breeder Reactor » (MSBR), pouvant produire de l'électricité, fut stoppé à l'ORNL, mais des études furent réalisées par une collaboration CNRS-EDF au début des années 2000. Elles démontrèrent les problèmes rédhibitoires de ce concept, avec le retraitement du combustible et la gestion de grandes masses de graphite irradié. Les avantages des combustibles

liquides restaient néanmoins suffisants pour justifier des recherches systématiques, utilisant des simulations neutroniques, sur de nouvelles configurations.

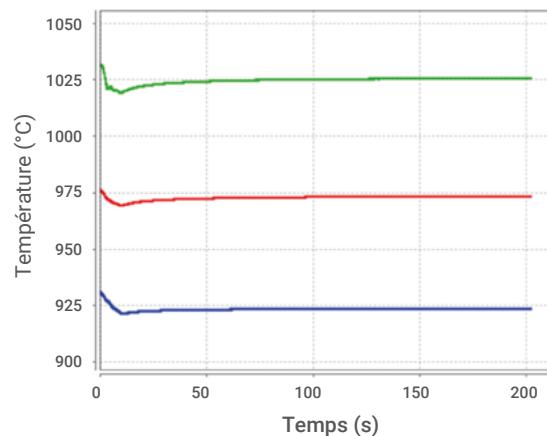
L'approche française depuis 2000

Un concept innovant, satisfaisant les critères du forum international Generation 4 et éliminant le graphite du cœur du réacteur, a été adopté en 2008 sous le nom de "Molten Salt Fast Reactor" (MSFR) [3, 4] : il s'agit d'un réacteur nucléaire à sels fondus à spectre d'énergie neutronique dit « rapide », car les neutrons ne sont plus modérés. Cette configuration, largement surgénératrice en matière fissile, aurait une très grande stabilité de fonctionnement ; le démarrage de chaque réacteur nécessiterait cependant une grande quantité de noyaux fissiles (3600 kg/GW_{th}). En attendant une production suffisante de combustible par surgénération, l'objectif des 3000 GW_{th} en trente ans prévus dans les différents scénarios imposera l'utilisation d'uranium enrichi à 13 % en ²³⁵U et de plutonium issus des réacteurs REP actuels. Il sera même possible, voire préférable, d'inclure dans le combustible les actinides mineurs du combustible usé des REP actuels (*i.e.* les éléments très radioactifs de la série des actinides autres que l'uranium, le plutonium et le thorium, produits artificiellement en faibles quantités par les réacteurs actuels). Les travaux de recherche sur le MSFR ont été soutenus par l'Europe dans le cadre du projet EVOL (*Evaluation and viability of liquid fuel reactors*), et la sûreté et le comportement de ces réacteurs en cas d'accident font l'objet depuis 2015 des projets SAMOFAR (*Safety assessment of molten salt fast reactor*) puis SAMOSAFER (*Severe accident modeling and safety assessment for fluid-fuel energy reactors*) du programme Euratom H2020.

La configuration que nous allons décrire maintenant (fig. 1) correspond à un réacteur MSFR d'une puissance de 3 GW_{th} en cycle Th/U utilisant des fluorures ; des versions de plus faible puissance, ainsi que l'utilisation du cycle U/Pu avec des chlorures, sont aussi à l'étude.



a



b

2. Suivi de charge de 1 GW_{th} à 3 GW_{th} en dix secondes.

(a) Évolution des puissances demandées (courbe rouge) et fournies (courbe bleue sous la courbe rouge).

(b) Évolution des températures du sel combustible en entrée des échangeurs (courbe verte), en sortie des échangeurs (courbe bleue) et moyenne (courbe rouge).

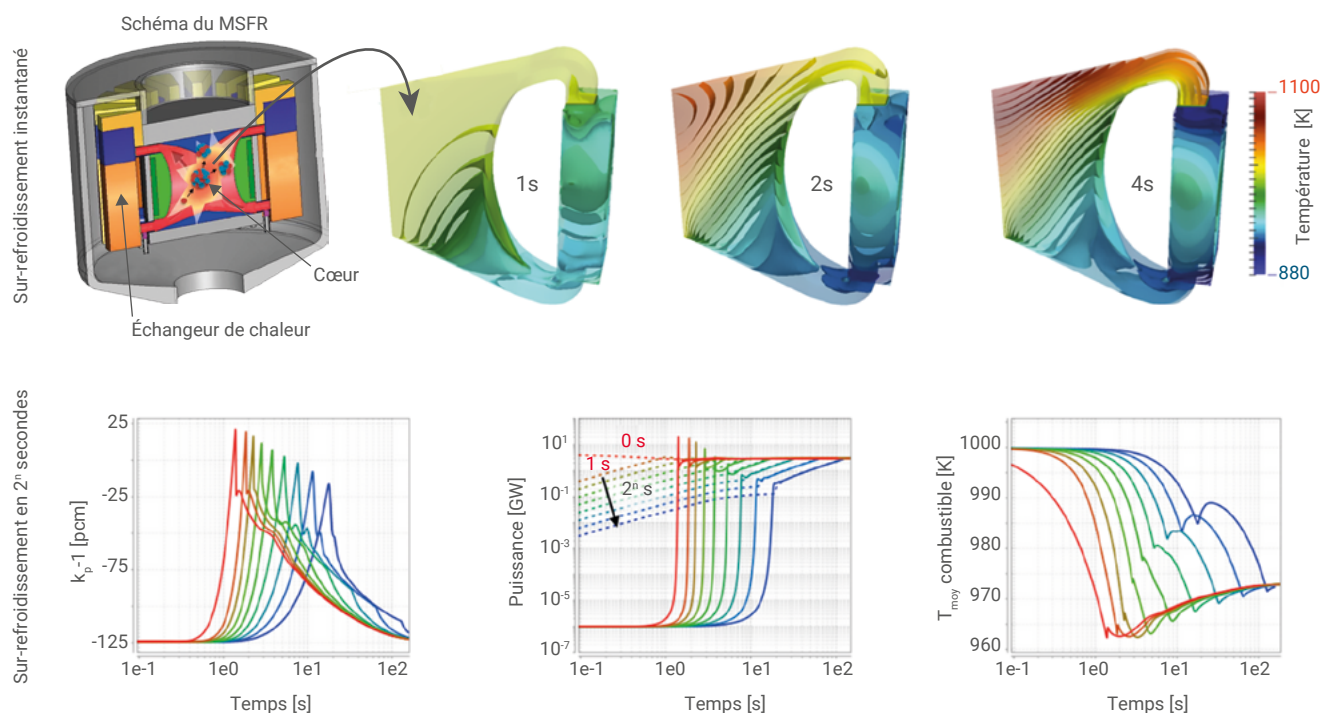
Circuit combustible

Classiquement, dans un réacteur à sels fondus, le combustible liquide sort du cœur pour passer dans des échangeurs de chaleur et des pompes avant de revenir dans le cœur : il y a alors un risque inacceptable d'avoir un jour une fuite de combustible. Dans le concept MSFR, le circuit du combustible est entièrement confiné dans une cuve et ne subit ni effort mécanique ni températures excessives. Des secteurs de refroidissement facilement transportables et manipulables (à droite sur la figure 1), sont accrochés sur le bord intérieur de la cuve qui contient 18 m³ de sel fondu, dont 9 m³ dans la zone centrale. Ces secteurs comprennent une pompe, un échangeur de chaleur, une protection limitant le flux neutronique sur la pompe et les échangeurs, ainsi qu'un réflecteur de neutrons ou une couverture fertile ; les atomes constituant cette dernière se trans-

forment en éléments fissiles sous l'effet des neutrons. Les arbres des pompes sont entraînés magnétiquement pour éviter une traversée du couvercle. Un autre sel, dit « intermédiaire » pénètre dans la cuve pour refroidir le circuit de combustible à travers les échangeurs de chaleur, mais également les parois en contact avec le combustible et la couverture fertile.

La cuve est fermée par un couvercle étanche contenant un réflecteur neutronique protégeant l'extérieur. Le bas de la cuve, également constitué d'un réflecteur neutronique, supporte des vannes actives et passives permettant la vidange d'urgence du combustible vers un réservoir conçu pour le contenir dans une géométrie fortement sous-critique, et pour évacuer passivement la puissance résiduelle. Cette vidange n'aurait normalement pas à intervenir même en cas d'accident : dans toutes les

>>>



3. Simulation numérique d'un accident de sur-refroidissement avec une puissance allant de 1 kW_{th} jusqu'à 3 GW_{th}.

En haut : évolution du champ de température dans le cœur et un échangeur de chaleur pour un transitoire instantané (la partie en blanc est la couverture fertile). En bas : variation temporelle de la marge de criticité prompte $k_p - 1$ (qui est reliée au contrôle de l'excès de neutrons permettant d'entretenir la réaction en chaîne), de la puissance et de la température moyenne du combustible lors de transitoires d'une durée allant de 0 à 128 s (code de couleurs) [5].

>>>

situations actuellement envisagées, le combustible resterait dans le cœur grâce à un refroidissement passif utilisant la convection naturelle du sel intermédiaire. La chaleur ainsi extraite serait transférée dans le bâtiment réacteur, lui-même refroidi par l'air extérieur.

Pilotage

Puisque l'énergie produite par la fission est déposée directement dans le fluide caloporteur, un réacteur à combustibles liquides peut être piloté directement par l'extraction de chaleur, ce qui rend inutile toute « barre de commande » absorbant les neutrons.

Dans le principe, si la puissance demandée augmente, le sel combustible est refroidi, ce qui provoque une augmentation de réactivité donc une augmentation de puissance et finalement un retour à la température initiale avec une puissance de fission plus importante. Cet ajustement avec la demande extérieure se fait en quelques secondes mais peut entraîner des variations de température, indésirables dans les échangeurs de chaleur. La solution consiste à

obtenir la variation de puissance en modifiant simultanément les débits dans les circuits combustible et intermédiaire. L'étude des fonctionnements normal et accidentel du MSFR a nécessité le développement par le CNRS d'outils de simulation uniques au monde, prenant en compte les phénomènes physiques spécifiques à ce type de réacteur à combustible circulant [MSFR2]. La figure 2 montre la simulation d'un tel suivi de charge pour une puissance passant de 1 GW_{th} à 3 GW_{th} en dix secondes ! Cette possibilité de modifier rapidement la puissance produite sans conséquence pour l'intégrité du réacteur, faciliterait grandement l'intégration dans un mix énergétique comportant une forte part d'énergies renouvelables intermittentes.

Accident de sur-refroidissement

Les dernières années ont été consacrées essentiellement à l'étude de la sûreté du MSFR et de la possibilité d'accidents graves menant à un rejet massif de radioactivité dans l'environnement. De tels accidents n'ont pas encore été identifiés : la

situation la plus préoccupante mise en lumière est un sur-refroidissement massif et brutal du combustible dans le cas d'un sel combustible neuf ne produisant que 1 kW_{th} de fission par le biais des fissions spontanées. On suppose ce sel en circulation nominale, alors que le sel intermédiaire est à l'arrêt. Suite à une erreur d'un opérateur, le sel intermédiaire est mis en circulation nominale dans un temps très court. Sur la figure 3 en haut, on observe l'évolution du champ de température dans l'hypothèse irréaliste d'un transitoire instantané. Après quatre secondes, les températures se sont stabilisées et la puissance fournie est de 3 GW_{th}. En bas, à gauche de la figure 3, est représentée la variation temporelle de la marge à la criticité prompte^(b) pour différentes durées de ce sur-refroidissement. Si le transitoire est suffisamment court, le réacteur dépasse le seuil de criticité prompte. Si le combustible était solide, cette situation mènerait à sa destruction, et c'est d'ailleurs ce qu'il s'est produit à Tchernobyl. Au centre est représentée la puissance instantanée de fission dans le cœur. On constate bien un pic de puissance

allant jusqu'à 20 GW_{th} lorsque le transitoire dure moins de dix secondes. Toutefois, à droite, on constate que l'effet sur les températures est suffisamment faible pour qu'il n'y ait aucun effet mécanique : on n'a pas de modification violente du comportement du cœur pouvant entraîner un risque nucléaire.

Perspectives

Les travaux sur les réacteurs à sels fondus sont en plein essor, non seulement dans les centres de recherche (seize pays participent à des réunions organisées par l'IAEA depuis 2016 sur cette technologie), mais également au travers de *start-ups* un peu partout de par le monde. En France, des industriels comme Framatome, ORANO et CORYS ont commencé à s'intéresser depuis 2018 à ces recherches, portées jusqu'à depuis une vingtaine d'années par le monde académique. Depuis peu, un atelier national annuel sur le sujet des réacteurs à sels fondus est organisé par le CEA et le CNRS [6] ; en 2022, cet atelier a regroupé 150 participants, ce qui montre l'intérêt croissant en France pour ce type de réacteurs.

Comme mentionné régulièrement à raison, la technologie nucléaire actuelle conduit à accumuler des « radioéléments à vie longue » considérés comme des déchets, et qui resteront dangereux pendant des millénaires. En réalité, ce qui est aujourd'hui un déchet pourrait devenir un combustible en changeant de type de réacteur nucléaire. Des études sont maintenant en cours au niveau européen sur des concepts de réacteurs à sels fondus intrinsèquement sûrs, comme par exemple le projet MIMOSA pour "Multi-recycling strategies of spent nuclear fuel focusing on molten salt technology" du programme Horizon Europe, porté par l'industriel ORANO. Dans ce cadre, le projet national ISAC ("Innovative solution for actinide recycling") financé par la banque publique d'investissement BPI dans le cadre du plan de relance, a ainsi été lancé en 2022 avec comme partenaires le CEA, le CNRS, EDF, Framatome et ORANO. Il vise à des études de préconception d'un réacteur à sels fondus incinérateur de plutonium et d'américium.

Les réacteurs à sels fondus peuvent aussi être conçus pour être pilotables et pouvoir venir en appui aux sources intermittentes. Un tel type de réacteur nucléaire aurait ainsi un atout supplémentaire et pourrait accompagner le développement des énergies renouvelables.

Enfin, certains de ces nouveaux réacteurs en cours d'étude sont des petits réacteurs modulaires (*Small Modular Reactor* ou SMR en anglais) vus comme des piles nucléaires, de taille et de puissance réduite afin de pouvoir être fabriqués en usine et transportés sur leurs lieux d'utilisation [7]. De tels petits réacteurs à sels fondus seraient ainsi très compacts, avec des cœurs de quelques centaines de litres transportables sur un camion et installables en mode *plug and play* chez les utilisateurs pour produire de l'électricité ou de la chaleur industrielle, tout en brûlant des déchets nucléaires. Cela permettrait notamment de remplacer des milliers de diesels par un équipement n'émettant pas de gaz à effet de serre. La *start-up* française NAAREA se positionne sur ce type de créneau depuis trois ans avec la mise au point du XSMR, un microréacteur à sels fondus de quelques dizaines de mégawatts, et l'objectif d'un démonstrateur dans les toutes prochaines années. Le CEA est également en train d'essaimer : en effet, en 2023, la start-up Stellaria a mis au point un concept de réacteur à sels fondus de quelques centaines de mégawatts. Le plan d'investissement national France 2030 lancé en 2022 par le président de la République comporte un volet de financement de *start-ups* développant de tels petits réacteurs modulaires, afin de donner un élan français à ce domaine de R&D. ■

(a) Il existe deux cycles surgénérateurs à neutrons rapides : le cycle uranium-plutonium, dans lequel l'isotope fissile est le plutonium 239 et l'isotope fertile est l'uranium 238 (transmuté dans le réacteur en plutonium 239 fissile) ; et le cycle thorium-uranium, dans lequel l'isotope fissile est l'uranium 233 et l'isotope fertile le thorium 232.

(b) Un réacteur nucléaire critique est pilotable grâce à ses neutrons retardés. Lorsque qu'il devient critique sans nécessiter l'apport des neutrons retardés, il n'est plus pilotable. La marge à la criticité prompt est la marge de réactivité avant qu'il ne soit plus pilotable.

“Ce qui est aujourd'hui un déchet pourrait devenir un combustible en changeant de type de réacteur nucléaire.”



- 1• F.Y. Barbry, "A review of the Silene criticality excursions experiments", Rapport technique, CEA Centre d'Études de Fontenay-aux-Roses, 1993.
- 2• P.N. Haubenreich et J.R. Engel, "Experience with the molten salt reactor experiment", *Nucl. Appl. Technol.* **8** (1970) 107–117.
- 3• "Status of Molten Salt Reactor Technology", Technical Report Series no. **489** (2021), International Atomic Energy Agency, Vienne. <https://cutt.ly/preprint-iaea>
- 4• M. Allibert et al., "Chapter 7 - Homogeneous Molten Salt Reactors (MSRs): The Molten Salt Fast Reactor (MSFR) concept", *Handbook of Generation IV Nuclear Reactors*, Second Edition, Elsevier Science Publishing (2023).
- 5• A. Laureau et al., "Transient coupled calculations of the Molten Salt Fast Reactor using the Transient Fission Matrix approach", *Nuclear Engineering and Design*, **316** (2017) 112-124.
- 6• https://cutt.ly/youtube_1
- 7• « Les réacteurs nucléaires modulaires de faible puissance (SMR) : état des lieux et perspectives », Avis et Rapport du Comité de Prospective en Énergie de l'Académie des sciences (octobre 2022).