REFERENCE 97

G. COLOMB, D. MANGIN, AND L. MAUBERT, "CRITICALITY OF PLUTONIUM NITRATE SOLUTIONS (19% ^{240}Pu)," (IN FRENCH) COMISSARIAT a l'ENERGIE ATOMIQUE REPORT CEA-N-1898 (SEPTEMBER 1976).

- Note CEA-N-1898 -

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay
Département de Sûreté Nucléaire

CRITICITE DE SOLUTIONS DE NITRATE DE PLUTONIUM (19 % ^{240}Pu)

par

Guy COLOMB, Daniel MANGIN, Louis MAUBERT

- Septembre 1976 -

CEA-N-1898 - COLOMB Guy, MANGIN Daniel, MAUBERT Louis

CRITICITE DE SOLUTION DE NITRATE DE PLUTONIUM (19 % ^{240}Pu)

Sommaire.- Ce rapport présente les résultats d'approches critiques réalisées avec des solutions de nitrate de plutonium (19 % de ^{240}Pu) dans deux géométries, l'une cylindrique annulaire de diamètres 200/500 mm, l'autre parallélépipédique de grandes dimensions : 1300 x 1300 x 1000 mm^3. La gamme de concentrations en plutonium total : 13,2 - 105 g/l a été explorée. Diverses méthodes de calcul sont confrontées à l'expérience. Une formule a été établie, donnant la concentration limite critique d'une solution de nitrate de plutonium en fonction de l'acidité et des pourcentages en ^{240}Pu et ^{241}Pu du plutonium.

1976 48 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

CEA-N-1898 - COLOMB Guy, MANGIN Daniel, MAUBERT Louis

CRITICALITY OF PLUTONIUM NITRATE SOLUTION (19 % ^{240}Pu)

Summary.- This report presents the results of critical approaches performed with plutonium nitrate solutions containing 19 % of ^{240}Pu in two geometrical shapes ; the first one is a annular cylinder with diameters of 200 and 500 mm, the second one is a parallelepiped of great dimensions : 1300 x 1300 x 1000 mm^3. A total plutonium concentrations range of 13.2 to 105 g/l has been examined. Various calculation methods are compared to experiment. A formula has been established which gives the critical limit concentration for a plutonium nitrate solution as a function of acidity and of the ^{240}Pu and ^{241}Pu percentages.

1976 48 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

Note CEA-N-1898

DESCRIPTION-MATIERE *(mots clefs extraits du thesaurus SIDON/INIS)*

en français	*en anglais*
NITRATES DE PLUTONIUM	PLUTONIUM NITRATES
PLUTONIUM 240	PLUTONIUM 240
SOLUTIONS AQUEUSES	AQUEOUS SOLUTIONS
CRITICITE	CRITICALITY
MASSE CRITIQUE	CRITICAL MASS
TAILLE CRITIQUE	CRITICAL SIZE
CONFIGURATION CYLINDRIQUE	CYLINDRICAL CONFIGURATION
CONFIGURATION RECTANGULAIRE	RECTANGULAR CONFIGURATION

- Note CEA-N-1898 -

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay
Département de Sûreté Nucléaire

CRITICITE DE SOLUTIONS DE NITRATE DE PLUTONIUM (19 % ^{240}Pu)

par

Guy COLOMB*, Daniel MANGIN*, Louis MAUBERT**

* Section d'Etudes Expérimentales de Sûreté Nucléaire et Criticité
** Service d'Etudes de Criticité

LISTE DES CHAPITRES

		Pages
- INTRODUCTION		
CHAPITRE I	: Résultats expérimentaux	1
CHAPITRE II	: Confrontation des résultats théoriques à l'expérience.	11
CHAPITRE III	: Extension par le calcul des résultats - Concentration limite critique.	19
Conclusions		22
Références bibliographiques		24
Figures.		

C H A P I T R E I

RESULTATS EXPERIMENTAUX

INTRODUCTION

Depuis 1973, la Station de Criticité de VALDUC dispose d'un lot de 30 Kg de plutonium à forte teneur en Pu 240 (19 %).

L'effet d'empoisonnement par le Pu 240 a été mesuré expérimentalement sur un cylindre annulaire de diamètres 500/200 mm. Cette série d'expériences complète celles déjà réalisées sur le même récipient, mais avec des solutions à 3,4 et 10 % de Pu 240 [1] [2].

Par ailleurs, pour explorer le domaine des faibles concentrations conduisant à des géométries critiques grandes mais finies, des approches critiques ont été réalisées sur une cuve parallélépipédique de grandes dimensions (1300 x 1300 x 1000 mm) avec ce même lot de plutonium. Le but de ces expériences était, en particulier, d'obtenir des données précises permettant de répondre au problème de sûreté-criticité posé par les pots des mélangeurs-décanteurs de l'Usine UP 2 de LA HAGUE.

I - 1 - COMPOSITION DE LA SOLUTION

Les expériences que nous décrivons ci-après ont été réalisées avec une solution nitrique de nitrate de plutonium dont la composition isotopique est la suivante :

74,20 % de ^{239}Pu	(
18,88 % de ^{240}Pu	)
5,78 % de ^{241}Pu	(au 1.10.73
1,14 % de ^{242}Pu	)
	(

Les analyses effectuées avant leur réalisation ont mis en évidence les impuretés chimiques suivantes, exprimées en ppm par rapport au plutonium :

Fe	16700 ± 5 %	
^{241}Am	4400 ± 5 %	
Cr	5000)	(valeurs estimées en fonction de la teneur en fer
Ni	4000)	et de la composition de l'acier inoxydable)
W	1000	
Mo	350	
Co	150	
V	20	
Ti	10	

Les expériences sur le cylindre annulaire ont été réalisées autour du 13.11.73; la concentration en ^{241}Am était de 4800 ppm. Celles sur la cuve parallélépipédique ont été réalisées autour du 26.4.74; la concentration en ^{241}Am était de 6100 ppm.

I - 2 - PRECISIONS DES RESULTATS OBTENUS

Les résultats donnés en annexe dans les tableaux 1 à 6 sont ceux obtenus directement avec les cuves expérimentales. Aucune correction n'a été apportée sur les hauteurs critiques pour tenir compte des fonds légèrement coniques et des variations de température.

La température de 21° C de la solution de plutonium donnée pour les expériences réalisées sur le cylindre de 500/200 mm est une mesure indirecte obtenue au contact du pot.

Pour les expériences réalisées sur la cuve de 1300 x 1300 x 1000 mm, la température de 26° C de la solution de plutonium est une mesure réelle obtenue par immersion d'un thermocouple. La température du réflecteur est de 23° C. Cet échauffement des solutions fissiles de 3° C au-dessus de la température ambiante est dû surtout à l'activité α de l'américium.

Les erreurs expérimentales à prendre en compte sont :

a) - erreurs d'analyses

concentration Pu	: $\pm$ 1,5 %
concentration Fe	: $\pm$ 5 %
acidité libre $[H^+]$ exprimée en normalité	: $\pm$ 2 %
(NO_3^-) exprimée en normalité	: $\pm$ 1 %
densité	: $\pm$ 0,1 %

L'erreur sur la concentration en plutonium est due surtout à la séparation préalable sur colonne de résine que nécessitent les fortes teneurs de la solution en impuretés métalliques et en américium.

b) - erreur sur la détermination de la hauteur critique : ΔH_C

Cette erreur se compose d'une erreur fixe de 1/10ème de mm (précision de la pointe de mesure) et d'une erreur variable due à la dispersion de la hauteur critique extrapolée par les 6 ensembles de comptages.

c) - erreur sur le volume critique : ΔVc

Cette erreur est la somme des erreurs apportées par l'imprécision de la détermination de Hc et par l'imprécision de l'étalonnage des cuves.

Cette erreur d'étalonnage pour la cuve annulaire 500/200 est de l'ordre de 3/10000 de Vc.

Pour la cuve parallélépipédique, l'erreur totale sur le volume est de 500 cm^3 (augmentation maximale de volume due à la déformation du fond sous l'effet de la pression hydrostatique) plus 5/10000 de Vc (erreur due à l'étalonnage).

d - erreur sur la masse critique : ΔMc

La masse critique en plutonium total est obtenue en multipliant le volume critique par la concentration de la solution

$$Mc = Vc \times C$$

$$\Delta Mc = Vc \times \Delta C + C \times \Delta Vc$$

I - 3 - DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET RESULTATS.

I-3-1 - Cylindre annulaire de 500/200 mm (fig. 1)

Le cylindre annulaire de 500/200 mm, en acier inoxydable Z 3 CN 18/10 est constitué par deux cylindres concentriques de 3 mm d'épaisseur soudés sur une base formant socle, dont l'épaisseur varie de 18 à 12 mm (pour favoriser le retour de la solution au stockage en fin de manipulation). La partie supérieure entre les 2 cylindres est fermée par une couronne soudée de 18 mm d'épaisseur. Des piquages avec obturateurs soudés sur cette couronne permettent d'effectuer les mesures de niveaux nécessaires aux expériences et de raccorder ce pot au réseau de ventilation.

Deux types d'expériences ont été réalisées conformément au programme demandé.

a) - la première série d'expériences consiste à mesurer la hauteur critique en fonction de la concentration de la solution introduite dans la partie annulaire, la cavité intérieure étant occupée par l'air ambiant, l'extérieur du cylindre de 500 mm étant réfléchi par de l'eau montée au même niveau que celui de la solution.

b) - la deuxième série d'expériences diffère de la précédente par le garnissage de la cavité intérieure. Une feuille de cadmium de 8/10 mm d'épaisseur est enroulée et plaquée sur toute la hauteur à l'intérieur du cylindre de diamètre 200 mm et de la paraffine remplit totalement le volume de la cavité.

Les schémas des dispositifs expérimentaux, les tableaux de résultats et les courbes associées, correspondant aux deux types d'expériences réalisées sur le cylindre annulaire 500/200 mm sont les suivants :

1 - air à l'intérieur + réflecteur H_2O à l'extérieur

- fig. 1 - repère 1 : schéma du dispositif expérimental
- tableau 1 : résultats expérimentaux

- fig. 2 - courbe 1 : hauteur critique de solution en fonction de la concentration C en Pu total
- fig. 3 - courbe 1 : masse critique = f (C)

2 - Paraffine + cadmium à l'intérieur; réflecteur H_2O à l'extérieur.

- fig. 1 - repère 2 : schéma du dispositif expérimental
- tableau 2 : résultats expérimentaux
- fig. 2 - courbe 2 : Hc = f (C)
- fig. 3 - courbe 2 : Mc = f (C)

I-3-2 - Cuve parallélépipédique (fig. 4 et 5).

Les expériences ont été réalisées dans une cuve en acier inoxydable Z 3 CN 18.10 de 1300 x 1300 mm de côté et de hauteur 1000 mm, surélevée par quatre pieds en acier inoxydable de 500 mm de hauteur.

Les parois et le fond sont en tôle de 5 mm d'épaisseur, l'ensemble étant renforcé par des nervures de 8 mm d'épaisseur. Horizontalement, une nervure ceinture la cuve au milieu de la hauteur; verticalement, deux nervures espacées de 440 mm renforcent les panneaux latéraux se raccordant sous le fond.

Cette cuve est surmontée d'un réflecteur constitué par une boîte parallélépipédique de hauteur 20 cm avec des parois d'épaisseur 1 cm en Lucoflex $(CH_2 = CHCl)_n$ de densité 1,420. Les parois inférieure et supérieure sont maintenues écartées par des entretoises et l'ensemble du réflecteur est suspendu à un croisillon en acier inoxydable. Ce réflecteur peut être rempli d'eau pour certaines expériences et il doit dans ce cas se déplacer avec la solution fissile. Sa section est légèrement inférieure à celle de la cuve et comme il est équilibré par des contrepoids il peut se déplacer verticalement sous l'effet d'une faible poussée hydrostatique.

L'étude s'est décomposée en quatre parties :

1) - avec réflexion inférieure et latérale de la cuve

(réflecteur supérieur verrouillé en haut de la cuve - Cf. fig. 4).

La concentration de la solution utilisée pour ces expériences a varié de 105 à 13,2 g/l.

Pour une concentration donnée, la solution est introduite dans la cuve expérimentale et l'eau de la piscine est montée en même temps et au même niveau que celui de la solution.

Le tableau 3 est décomposé en deux parties :

- de 105 à 13,2 g/l - réflecteur supérieur mobile, sans eau, verrouillé en position haute;
- de 18,7 à 13,2 g/l - réflecteur supérieur mobile, plein d'eau, verrouillé en position haute.

Sur la figure 6, on a représenté Hc = F (C)

Sur la figure 7, on a représenté Mc = F (C)

NOTA : Deux expériences (expériences 1372 et 1370) comparatives ont été effectuées à la même concentration de 13,2 g/l afin de déterminer l'influence sur la hauteur critique du réflecteur, avec et sans eau, verrouillé en point haut.

2) - sans réflexion inférieure et latérale de la cuve (réflecteur mobile verrouillé en haut de la cuve)

La concentration de la solution utilisée pour ces expériences a varié de 52,7 g/l à 13,2 g/l.

Les résultats sont consignés dans le tableau 4 qui se décompose en deux parties :

- de 52,7 à 13,2 g/l - réflecteur mobile vide (sans eau) verrouillé en position haute,
- de 18,7 à 13,2 g/l - réflecteur mobile plein d'eau verrouillé en position haute.

Sur la figure 6, on a représenté Hc = F (C)

Sur la figure 7, on a représenté Mc = F (C).

3) - avec réflexion totale (Hc + 20 cm), réflecteur mobile déverrouillé rempli d'eau et équilibré pour suivre dans la cuve la monté de solution. Pour chaque mesure, le réflecteur extérieur dépasse de 20 cm le niveau supérieur de la solution (fig. 5).

Pour des raisons de sécurité, l'étude s'est limitée à des concentrations variant de 19,7 g/l (concentration conduisant au minimum de masse critique) à 13,2 g/l.

Les résultats sont consignés dans le tableau 6 et représentés sur la figure 8.

I - 4 - COMMENTAIRES SUR LES RESULTATS EXPERIMENTAUX.

I-4-1 - Réservoirs annulaires 500/200 mm.

1 - L'examen de la figure 2 montre que la "concentration la plus réactive" (celle conduisant au minimum de hauteur critique) est, dans les 2 configurations (avec et sans garnissage intérieur), voisine de 100 g/l de Pu_{total}.

2 - Sur la figure 3, on voit que la présence d'un garnissage intérieur fait passer la masse minimale critique de 3,35 Kg à 7,10 Kg de Pu total. L'épaisseur annulaire de solution de 150 mm est encore supérieure à l'épaisseur minimale critique qui conduirait à une hauteur critique infinie. On notera le déplacement correspondant vers les fortes concentrations du minimum de masse (de 40 à 65 g/l de Pu_{total}).

I-4-2 - Cuve parallélépipédique.

1 - Sur la figure 6, on constate que la "concentration la plus réactive" est également voisine de 100 g/l de Pu_{total}.

2 - Les configurations critiques expérimentales les plus pures sont celles en "réflexion totale". Elles présentent l'intérêt de mieux préciser le domaine des faibles concentrations critiques.

Les configurations dites "sans réflexion" sont en réalité soumises aux réflexions parasites dues à l'environnement (fond bétonné de la piscine, murs du local, réflecteur mobile vide d'eau).

Les configurations avec réflexions inférieure et latérale, sont elles aussi soumises à la réflexion du réflecteur mobile.

3 - D'après la figure 8, pour 16,2 g/l, on notera l'effet sensible sur la hauteur critique de l'acidité $[H^+]$, il est d'environ $\frac{2,50 \text{ cm}}{[H^+]}$.

4 - Dans le chapitre suivant, on établira par extrapolation des résultats expérimentaux que, pour la solution expérimentale d'acidité voisine de 2 N, la concentration limite critique est de 10,5 g/l de Pu_{total}.

CHAPITRE II

CONFRONTATION DES RESULTATS THEORIQUES A L'EXPERIENCE.

II - 1 - METHODES DE CALCUL UTILISEES.

. Programme APOLLO [3]

C'est un code, élaboré par le Service d'Etudes des Réacteurs et de Mathématiques Appliquées de SACLAY, écrit en FORTRAN IV et chargé sur IBM 360-91. Il résout l'équation du transport dans l'approximation multigroupe. Il permet de calculer le flux, direct ou adjoint, en énergie et en espace pour un milieu à une dimension.

On l'a utilisé pour déterminer, avec l'option TRANSPORT, les Laplaciens matières B^2m et pour contracter en 16 groupes d'énergie les sections efficaces macroscopiques moyennes des solutions de $(NO_3)_4$ Pu.

. Programme DTF IV [4]

Ce programme Américain résout également l'équation multigroupe du transport, avec une diffusion anisotrope, pour une géométrie à une dimension. Il a été utilisé pour calculer des dimensions critiques.

. Programme MORET [5]

C'est un programme élaboré et exploité par le Service d'Etudes de Criticité. Il détermine, pour des géométries complexes, des coefficients de multiplication effectifs en utilisant la méthode MONTE CARLO et des sections efficaces multigroupes. On l'a utilisé ici, soit avec les sections efficaces à 16 groupes d'énergie de HANSEN et ROACH [6], soit avec les sections macroscopiques moyennes sorties par APOLLO (même découpage en énergie).

II - 2 - COMPARAISON DU B^2MATIERE CALCULE PAR APOLLO AU B^2GEOMETRIQUE EXPERIMENTAL.

Pour les faibles concentrations ($C(Pu_T) \leqslant 19,7$ g/l, les configurations critiques expérimentales sont pures et se présentent sous la forme de parallélépipèdes de solution entièrement réfléchis, latéralement et inférieurement par les parois en inox de la cuve d'épaisseur 5 mm plus 20 cm d'eau, supérieurement par le réflecteur mobile qui peut être assimilé à une paroi de lucoflex de 10 mm d'épaisseur plus 18 cm d'eau.

Calcul des distances totales d'extrapolation.

Pour chaque concentration expérimentale, on a calculé par APOLLO le B^2matière et les sections efficaces macroscopiques moyennes contractées en 16 groupes (découpage Hansen et Roach).

Par DTF (sections efficaces APOLLO), on a calculé :

a) l'épaisseur critique d'une plaque de section infinie réfléchie sur les deux faces par 5 mm d'inox, plus 20 cm d'eau,

b) l'épaisseur critique d'une plaque de section infinie réfléchie sur les deux faces par 10 mm de lucoflex et 18 cm d'eau.

Par égalité de Laplaciens : $B^2m = \left(\frac{\pi}{E_c + 2}\right)^2$

On tire δ, la distance totale d'extrapolation.

On a trouvé δ_1 (5mm inox plus 20 cm H_2O) $\simeq$ 5,49 cm

δ_2 (10 mm lucoflex plus 20 cm H_2O) $\simeq$ 4,62 cm

Pour la gamme de concentrations considérée (19,7 - 13,2 g/l Pu_{total}), on a constaté que les δ sont sensiblement constantes.

En admettant que les distances totales d'extrapolation (5 mm inox + eau) sont identiques pour les faces latérales et la face inférieure de la cuve, on a calculé, pour chaque concentration, le B^2géométrique critique expérimental par la formule :

$$B^2g.\text{expérimental} = 2\left(\frac{\pi}{130 + 2\delta_1}\right)^2 + \left(\frac{\pi}{H_c + \delta_1 + \delta_2}\right)^2$$

Remarque.

Etant données les grandes dimensions du volume de solution, l'imprécision sur les distances d'extrapolation calculées n'entraînent qu'une très faible incertitude sur la valeur du B^2géométrique expérimental.

Résultats.

C (Pu_{total}) (g/l)	19,7	17,7	15,8	13,6	13,2
H_c (solution) (cm)	28,31	32,40	39,67	57,25	66,34
B^2géométrique expérimental (10^{-4} cm^{-2})	76,80	64,55	49,76	31,68	26,82
B^2matière (APOLLO) (10^{-4} cm^{-2})	78,00	65,22	50,83	31,42	27,89
$\frac{B^2(APOLLO) - B^2exp.}{B^2 exp.}$ (en %)	+ 1,6	+ 1,0	+ 2,1	- 0,8	+ 4,0

L'examen du tableau ci-dessus montre un très bon accord entre le B^2matière calculé par APOLLO et le B^2géométrique critique expérimental.

Extrapolation de B^2géométrique = F [C (Pu_{total})].

Etant donné le très bon accord entre B^2m (APOLLO) et B^2géométrique expérimental dans le domaine des faibles concentrations, l'extrapolation proche de la courbe B^2g = F [C (Pu_{total})] jusqu'à la valeur nulle peut être faite à l'aide de la courbe des B^2matière calculés par

APOLLO, pour des solutions d'acidité voisine de 2 N et une concentration en Fer voisine de 0,35 g/l.

C (Pu_T) (g/l)	19,7	17,7	15,8	14	13,6	13,2	11	9
B^2matière (APOLLO) (10^{-4} cm^{-2})	78,0	65,2	50,8	36,2	31,4	27,9	5,84	-17,8

La figure 9 représente les interpolations graphiques effectuées.

On y relève que :

- la concentration limite critique ($B^2m = 0$) est de 10,5 g de Pu_{total},

- la concentration limite critique pour la cuve à section carrée 130 x 130 cm^2 (hauteur critique infinie ou $B^2m = B^2$géometrique horizontal) est de 11,3 g/l de Pu_{total}.

II - 3 - RESULTATS DE CALCULS.

Le coefficient de multiplication effectif K_{eff} de plusieurs systèmes expérimentaux critiques (réservoir annulaire et cuve parallélépipédique) a été calculé à l'aide du programme Monte Carlo MORET,

- d'une part, avec les sections efficaces macroscopiques de la solution établies par APOLLO avec l'option TRANSPORT, et pour les isotopes ^{239}Pu, ^{240}Pu, ^{241}Pu, ^{242}Pu, ^{241}Am, respectivement les jeux de sections numéros 239, 240, 241, 242, 541. Les sections efficaces des autres matériaux sont celles de HANSEN et ROACH;

- d'autre part, avec les sections efficaces à 16 groupes d'énergie de HANSEN et ROACH, en faisant les hypothèses suivantes : on retient les pourcentages réels en ^{240}Pu, le complément étant assimilé à du ^{239}Pu; ^{241}Am est négligé.

Les "sorties" du programme MORET fournissent Fi les fissions produites dans le milieu fissile par groupe i .

On appelle $\bar{g}_f$, groupe moyen des neutrons induisant la fission :

$$\bar{g}_f = \frac{\sum_{i=1}^{16} i.F_i}{\sum_{i=1}^{16} F_i}$$

Ce paramètre est une caractéristique neutronique intéressante du milieu fissile dans son environnement.

II-3-1 - Réservoir annulaire 500 x 200 mm.

C (Pu_{total}) (g/l)	Configuration *	$\bar{g}_f$: groupe moyen des neutrons induisant la fission	Keff ± 2 σ MORET	
			Sections efficaces HANSEN et ROACH	Sections efficaces APOLLO (option TRANSPORT)
30,8	12	15,64	0,996 ± 0,009	0,969 ± 0,009
51,0	12	15,47	0,995 ± 0,009	0,980 ± 0,009
61,0	42	15,40	1,024 ± 0,009	0,983 ± 0,009
104,0	12	15,22	1,020 ± 0,009	0,995 ± 0,009
105,0	42	15,18	1,012 ± 0,009	0,997 ± 0,009
165,0	42	14,80	1,015 ± 0,009	1,009 ± 0,009

* 12 : air dans la cavité centrale, réflexions inférieure et latérale par de l'eau
42 : (Cd + paraffine) dans la cavité centrale, réflexions inférieure et latérale par de l'eau.

II-3-2 - Cuve parallélépipédique.

C (Pu_{total}) (g/l)	réflexion	$\bar{g}_f$ = groupe moyen des neutrons induisant la fission	Keff ± 2 σ MORET	
			Sections efficaces HANSEN et ROACH	Sections efficaces APOLLO (option TRANSPORT)
13,2	totale	15,80	1,015 ± 0,009	0,957 ± 0,009
13,6	totale	15,80	0,998 ± 0,009	0,944 ± 0,009
15,8	totale	15,77	1,002 ± 0,009	0,952 ± 0,009
17,7	totale	15,76	0,987 ± 0,009	0,947 ± 0,009
29,2	"partielle"*	15,65	1,000 ± 0,009	0,967 ± 0,009
52,7	"partielle"	15,45	1,016 ± 0,009	0,966 ± 0,009
104,5	"partielle"	15,20	1,006 ± 0,009	1,004 ± 0,009

* "partielle" : réflexions inférieure et latérale.

II - 4 - CONCLUSIONS SUR LES RESULTATS DE CALCUL.

Sur la figure 10, on a représenté l'ensemble des Keff calculés sur les systèmes expérimentaux critiques, en fonction du groupe moyen neutrons induisant la fission $\bar{g}_f$.

L'analyse de cette figure conduit aux conclusions suivantes :

- le programme MORET, avec les sections efficaces à 16 groupes d'énergie de HANSEN et ROACH (en considérant le pourcentage réel en ^{240}Pu, en assimilant le complément à ^{239}Pu et en négligeant ^{241}Am), donne un bon accord avec l'expérience dans la gamme de concentrations explorée : 13,2 - 165 g/l de Pu_{total}.

Ce résultat montre, qu'avec la composition isotopique présente, l'assimilation de 1,14 % de ^{242}Pu à du ^{239}Pu compense la minoration effectuée en assimilant 5,78 % de ^{241}Pu à du ^{239}Pu.

- le programme MORET, avec les sections efficaces macroscopiques de la solution établies par APOLLO (option TRANSPORT), donne une décroissance régulière du Keff avec $\bar{g}_f$ ou encore une croissance régulière du Keff avec la concentration (Keff de l'ordre de 0,95 pour les faibles concentrations voisines de 13 g/l, Keff de l'ordre de 1,00 pour 100 g/l de Pu_{total}).

Ce résultat semble mettre en cause le traitement de l'isotope ^{240}Pu mais aucun diagnostic n'a pu être encore formulé avec certitude. Quoiqu'il en soit, la courbe de la figure 10 constitue, pour la méthode et les sections employées une "courbe d'étalonnage".

CHAPITRE III

EXTENSION DES RESULTATS - CONCENTRATIONS LIMITES CRITIQUES.

III - 1 - CONCENTRATIONS LIMITES CRITIQUES.

. C.R. RICHEY [7] a déterminé, à partir de résultats expérimentaux, la concentration limite critique d'un mélange ^{239}Pu - H_2O égale à 7,19 ± 0,15 g/l de ^{239}Pu. Par interpolation graphique de B^2matière calculé par APOLLO, nous avons trouvé 7,22 g/l de ^{239}Pu.

. Au paragraphe II-2, nous avons montré l'excellent accord entre les B^2matière calculés par APOLLO et l'expérience pour les faibles concentrations de la solution expérimentale (solution nitrique de $(NO_3)_4$ Pu; H^+ = 2; 19 % ^{240}Pu, 5,8 % ^{241}Pu).

Ces deux bons accords nous ont autorisés à calculer par APOLLO la concentration limite critique d'une solution nitrique de $(NO_3)_4$ Pu en fonction de l'acidité, des pourcentages en ^{240}Pu et ^{241}Pu.

On note :

E_o = % en ^{240}Pu

E_1 = % en ^{241}Pu

E_9 = % en ^{239}Pu tel que ($E_o + E_1 + E_9 = 100$)

C_{∞} = concentration limite critique en g/l de Pu_{total}.

TABLEAU de résultats de calculs APOLLO - C_{∞} (g/l de Pu_{total})

E_o \ $[H^+]$ / E_1		0	1	2	3	4
0	0	7,24	7,44	7,64	7,84	8,04
5	0	7,82	8,04	8,26	8,48	8,70
10	0	8,50	8,75	8,99	9,24	9,49
	5	8,29				
	10	8,08				
15	0	9,30	9,58	9,86	10,14	10,42
20	0	10,27	10,58	10,90	11,22	11,54
	5	9,96				
	10	9,67				
	20	9,13				
40	0	17,40	18,02	18,66	19,31	19,97

Une formule de cette concentration a été établie :

$$C_{\infty}(E_o, E_1, H^+) = C_{\infty}(E_o, 0, H^+) - (0{,}024 + 0{,}0018\, E_o)\, E_1$$

$$\text{avec } C_{\infty}(E_o, 0, H^+) = 7{,}24 \text{ exp. } 10^{-4}\,(151\, E_o + 0{,}659\, E_o^{\,2} + 0{,}0259\, E_o^{\,3})$$

$$+ 0{,}20.\, H^+.\, \text{exp. } 10^{-4}\,(196\, E_o + 1{,}155\, E_o^{\,2} + 0{,}0308\, E_o^{\,3})$$

Cette formule est approchée à moins de 1 % dans le domaine de validité suivant :

$$0 \leqslant E_o \leqslant 40 \; ; \; 0 \leqslant E_1 \leqslant 20 \; ; \; 0 \leqslant H^+ \leqslant 4.$$

Conclusions.

. Deux configurations géométriques, l'une annulaire de diamètres 500/200 mm, l'autre parallélépipédique de section 1300 x 1300 mm^2, ont été étudiées avec des solutions nitriques de $(NO_3)_4$ Pu (19 % de ^{240}Pu).

Des "points" critiques expérimentaux relativement purs et précis ont été réalisés pour une large gamme de concentrations : 13,2-165 g/l de Pu_{total}, contenant les concentrations conduisant au minimum de géométrie et au minimum de masse.

. Avec le réservoir annulaire, réfléchi inférieurement et latéralement par de l'eau, garni intérieurement (feuille de cadmium de 0,8 mm plus paraffine dans la cavité centrale) la masse minimale critique est de 7,10 Kg de Pu_{total}; cependant, l'épaisseur annulaire de solution de 150 mm est encore supérieure à l'épaisseur minimale critique qui rendrait sous-critique le réservoir quelle que soit la hauteur.

. Avec la cuve parallélépipédique, on a précisé expérimentalement la courbe de hauteur critique pour les faibles concentrations. Pour la solution expérimentale, la concentration limite critique a pu être évaluée à 10,5 g/l de Pu_{total}.

. La confrontation des résultats théoriques à l'expérience conduit principalement aux conclusions suivantes :

- le programme MORET, utilisant les sections efficaces à 16 groupes d'énergie de HANSEN et ROACH, avec les hypothèses (^{240}Pu réel, complément en ^{239}Pu, ^{241}Am négligé), donne un bon accord (avec une tendance à la surestimation du Keff, ce qui va dans le sens de la sécurité).

- Pour les faibles concentrations, il y a un très bon accord entre les B^2matière calculés par APOLLO et l'expérience. Toutefois, pour des raisons encore inexpliquées, le programme MORET utilisant les sections efficaces établies par APOLLO, (option TRANSPORT) donne une croissance régulière du Keff avec la concentration et sous-estime notablement le Keff pour les faibles concentrations.

. A l'aide de "points" obtenus par interpolation de B^2matière calculés par APOLLO, on a établi une formule exprimant la concentration limite critique d'une solution nitrique de $(NO_3)_4$ Pu en fonction de l'acidité et des pourcentages en ^{240}Pu et ^{241}Pu.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] - Jean-Claude BOULY - Robert CAIZERGUES - Edouard DEILGAT - Michel HOUELLE - Pierre LÉCORCHÉ.
EXPERIENCES DE CRITICITE REALISEES AVEC UNE SOLUTION HOMOGENE DE PLUTONIUM - RESULTATS EXPERIMENTAUX - INTERPRETATIONS THEORIQUES.
Rapport CEA - R 3367 (1967).

[2] - Robert CAIZERGUES -
INTERPRETATION D'EXPERIENCES SUR DES SOLUTIONS AQUEUSES DE NITRATE DE PLUTONIUM (complément au rapport CEA-R-3367)
Rapport CEA - R 4341 (1972)

[3] - Alain HOFFMANN, Françoise JEANPIERRE, Alain KAVENOKY, Michel LIVOLANT, Henri LORAIN.
APOLLO - Code multigroupe de résolution de l'équation du transport pour les neutrons thermiques et rapides.
Note CEA - N 1610 (1973)

[4] - K.D. LATHROP -
DTF IV, a FORTRAN IV program for solving the multigroup transport equation with anisotropic scattering.
LA - 3373 (1965).

[5] - R. CAIZERGUES - J.P. MARIOT - J. MORET-BAILLY - G. POULLOT, J.R. TEILLET -
MORET : un programme Monte Carlo de calcul rapide de coefficients de multiplication effectifs de milieux fissiles de géométrie complexe.
Note CEA - N 1645 (1973)

[6] - B.I. BELL - J.J. DEVANEY - G.E. HANSEN, C.B. MILLS - W.H. ROACH -
LOS ALAMOS GROUP - Averaged cross sections.
LAMS - 2941 (1963)

[7] - C.R. RICHEY - Reexamination of the value for the minimum critical concentration for Plutonium 239 in water.
N.S.E. (1974).

Manuscrit reçu le 11 juin 1976

CYLINDRE ANNULAIRE 500/200 mm - AIR DANS LA CAVITE CENTRALE - REFLEXION INFERIEURE ET LATERALE PAR DE L'EAU
CONFIGURATION (1) DE LA FIGURE (1)

RESULTATS EXPERIMENTAUX

	Caractéristiques de la solution						Paramètres critiques		
Expériences N°	C (g/l de Pu total) ± 1,5 %	NO_3^- (N)	H^+ (N)	Fer (g/l)	Densité	Température (° C)	Hc (cm)	Vc (l)	Mc (kg de Pu total)
1307	152	6,68	3,85	3,4	1,386	21,0	36,88 ± 0,04	61,13 ± 0,09	9,3 ± 0,2
1308	104	4,57	2,65	2,12	1,271	20,5	34,31 ± 0,03	56,86 ± 0,07	5,9 ± 0,2
1309	62	3,02	1,88	1,28	1,171	20,5	37,13 ± 0,02	61,55 ± 0,06	3,82 ± 0,07
1310	51	2,80	1,85	1,13	1,151	20,5	41,08 ± 0,06	68,1 ± 0,2	3,47 ± 0,07
1311	40,9	2,63	1,87	0,92	1,135	20,5	49,16 ± 0,03	81,57 ± 0,08	3,34 ± 0,06
1312	36,0	2,58	1,90	0,88	1,127	20,5	57,65 ± 0,03	95,65 ± 0,08	3,44 ± 0,06
1313	33,1	2,51	1,90	0,71	1,121	20,5	66,64 ± 0,02	110,55 ± 0,07	3,66 ± 0,06
1314	30,8	2,45	1,88	0,69	1,118	20,8	77,31 ± 0,02	128,25 ± 0,08	3,95 + 0,07
1315	28,7	2,47	1,94	0,65	1,114	20,3	93,34 ± 0,02	154,84 ± 0,08	4,44 ± 0,08

TABLEAU 1

CYLINDRE ANNULAIRE 500/200 mm - PARAFFINE ET FEUILLE DE CADMIUM DANS LA CAVITE CENTRALE - REFLEXION INTERIEURE ET LATERALE PAR DE L'EAU - CONFIGURATION (2) DE LA FIGURE N° 1 -

RESULTATS EXPERIMENTAUX

Expériences N°	Caractéristiques de la solution						Paramètres critiques		
	C (g/l de Pu total) ± 1,5 %	NO_3^- (N)	H^+ (N)	Fer (g/l)	Densité	Température °C	Hc (cm)	Vc (l)	Mc (kg de Pu total)
1316	165	6,17	3,11	3,8	1,393	21,8	60,72 ± 0,02	100,75 ± 0,07	16,6 ± 0,3
1317	136	5,30	2,76	3,2	1,329	21,0	54,33 ± 0,02	90,15 ± 0,06	12,3 ± 0,2
1318	105	4,14	2,17	2,5	1,261	21,5	51,46 ± 0,02	85,39 ± 0,06	9,0 ± 0,2
1319	86	3,82	2,21	1,87	1,226	21,0	54,24 ± 0,03	90,00 ± 0,08	7,7 ± 0,2
1321	74	3,59	2,22	1,56	1,202	21,5	59,33 ± 0,02	98,44 ± 0,07	7,3 ± 0,2
1323	61	3,34	2,19	1,41	1,180	21,5	70,46 ± 0,02	116,89 ± 0,07	7,1 ± 0,2
1324	55,8	3,17	2,12	1,33	1,168	21,0	83,61 ± 0,03	138,7 ± 0,1	7,7 ± 0,1
1325	53,7	3,11	2,11	1,25	1,164	21,5	92,09 ± 0,04	152,8 ± 0,2	8,2 ± 0,1

TABLEAU 2

EXPERIENCES CUVE PARALLELEPIPEDIQUE-REFLEXION INFERIEURE ET LATERALE - CONFIGURATION DE LA FIGURE N° 4

RESULTATS EXPERIMENTAUX

Expériences N°	Réflecteur						Caractéristiques de la solution						Paramètres critiques		
	Piscine			Mobile											
	sans H_2O	Inférieur et latéral		sans H_2O	avec H_2O	verrouil. pion. hte	C (g/l Pu total) ± 1,5 %	NO_3^- (N)	H^+ (N)	Fer (g/l)	Densité	Température ° C	Hc (cm)	Vc (l)	Mc kg de Pu total
		Hc	Hc +20 cm												
1327		X		X		X	105	4,17	2,23	2,30	1,259	27	16,47 ± 0,02	275,8 ± 0,7	28,8 ± 0,6
1328		X		X		X	84	3,44	1,88	1,88	1,212	27	16,47 ± 0,03	275,8 ± 0,7	23,1 ± 0,5
1329		X		X		X	62	3,17	2,02	1,38	1,174	27,5	17,08 ± 0,02	286,1 ± 0,7	17,7 ± 0,4
1330		X		X		X	52,7	2,97	1,99	1,13	1,156	27	17,78 ± 0,02	297,9 ± 0,7	15,7 ± 0,3
1332		X		X		X	41,8	2,81	2,04	0,90	1,138	27	18,98 ± 0,02	318,2 ± 0,7	13,3 ± 0,3
1334		X		X		X	31,9	2,60	2,01	0,70	1,120	26,5	21,46 ± 0,03	360,1 ± 0,7	11,5 ± 0,3
1336		X		X		X	29,2	2,58	2,04	0,65	1,116	26,5	22,26 ± 0,02	373,6 ± 0,7	10,9 ± 0,3
1338		X		X		X	26,9	2,54	2,04	0,59	1,112	26,5	23,26 ± 0,04	390,5 ± 0,7	10,5 ± 0,3
1340		X		X		X	24,8	2,42	1,95	0,61	1,110	26,5	24,51 ± 0,02	411,7 ± 0,8	10,2 ± 0,2
1342		X		X		X	22,8	2,35	1,92	0,54	1,106	26,5	26,22 ± 0,02	440,5 ± 0,8	10,0 ± 0,2
1344		X		X		X	21,7	2,35	1,95	0,50	1,105	27,5	27,30 ± 0,02	458,8 ± 0,8	10,0 ± 0,2
1346		X		X		X	20,7	2,36	1,97	0,40	1,102	27	28,57 ± 0,03	480,3 ± 0,8	10,0 ± 0,3
1348		X		X		X	19,7	2,35	1,98	0,46	1,100	27	30,06 ± 0,02	505,4 ± 0,8	10,0 ± 0,2
1372		X		X		X	13,2	2,28	2,03	0,33	1,090	27,5	67,73 ± 0,02	1140 ± 1	15,1 ± 0,3
1352		X			X	X	18,7	2,32	1,97	0,42	1,099	27	31,70 ± 0,02	533,1 ± 1,2	10,0 ± 0,2
1354		X			X	X	17,7	2,30	1,97	0,41	1,097	26,5	34,00 ± 0,03	572 ± 1,3	10,1 ± 0,2
1358		X			X	X	16,7	2,30	1,99	0,38	1,096	26,5	37,07 ± 0,02	623,9 ± 1,1	10,4 ± 0,2
1360		X			X	X	15,8	2,31	2,01	0,38	1,094	27	41,23 ± 0,02	694,1 ± 1,2	11,0 ± 0,3
1364		X			X	X	14,7	2,28	2,00	0,36	1,092	27	47,39 ± 0,02	798,2 ± 1,3	11,7 + 0,3
1366		X			X	X	13,6	2,33	2,07	0,35	1,093	27	58,37 ± 0,02	983,7 ± 1,4	13,4 ± 0,3
1370		X			X	X	13,2	2,28	2,03	0,33	1,090	26,5	67,25 ± 0,02	1133,8 ± 1,4	15,0 ± 0,3

TABLEAU 3

EXPERIENCES CUVE PARALLELEPIPEDIQUE - SANS REFLECTEUR -

RESULTATS EXPERIMENTAUX

Expériences N°	Réflecteur						Caractéristiques de la solution						Paramètres critiques		
	Piscine			Mobile											
	sans H_2O	Inférieur et latéral		sans H_2O	avec H_2O	verrouil. pion. hte	C (g/l Pu total) ± 1,5 %	NO_3^- (N)	H^+ (N)	Fer (g/l)	Densité	Température °C	Hc (cm)	Vc (l)	Mc kg de Pu total
		Hc	Hc + 20cm												
1331	X			X		X	52,7	2,97	1,99	1,13	1,156	26,5	19,58 ± 0,02	328,3 ± 0,7	17,3 ± 0,4
1333	X			X		X	41,8	2,81	2,04	0,90	1,138	26,5	20,76 ± 0,02	348,3 ± 0,7	14,6 ± 0,3
1335	X			X		X	31,9	2,60	2,01	0,70	1,120	26	23,13 ± 0,02	388,3 ± 0,7	12,4 ± 0,3
1337	X			X		X	29,2	2,58	2,04	0,65	1,116	26,5	23,92 ± 0,02	401,7 ± 0,7	11,7 ± 0,3
1339	X			X		X	26,9	2,54	2,04	0,59	1,112	26,5	24,91 ± 0,02	418,4 ± 0,7	11,3 ± 0,2
1341	X			X		X	24,8	2,42	1,95	0,61	1,110	26,5	26,16 ± 0,02	439,5 ± 0,8	10,9 ± 0,2
1343	X			X		X	22,8	2,35	1,92	0,54	1,106	26,5	27,84 ± 0,02	467,9 ± 0,8	10,7 ± 0,3
1345	X			X		X	21,7	2,35	1,95	0,50	1,105	27,5	28,95 ± 0,02	486,7 ± 0,8	10,6 ± 0,3
1347	X			X		X	20,7	2,36	1,97	0,49	1,102	26,5	30,20 ± 0,02	507,8 ± 0,8	10,5 ± 0,3
1349	X			X		X	19,7	2,35	1,98	0,46	1,110	26,5	31,67 ± 0,02	532,6 ± 0,8	10,5 ± 0,2
1373*	X			X		X	13,2	2,28	2,03	0,33	1,090	27,5	70,13 ± 0,02	1183 ± 1	15,6 ± 0,3
1353	X				X	X	18,7	2,32	1,97	0,42	1,099	27	33,34 ± 0,02	560,9 ± 1,1	10,5 ± 0,2
1355	X				X	X	17,7	2,30	1,97	0,41	1,097	26,5	35,68 ± 0,02	600,4 ± 1,1	10,6 ± 0,2
1359	X				X	X	16,7	2,30	1,99	0,38	1,096	26,5	38,76 ± 0,02	652,4 ± 1,2	10,9 ± 0,3
1361	X				X	X	15,8	2,31	2,01	0,38	1,094	27	43,01 ± 0,02	724,2 ± 1,3	11,4 ± 0,3
1365	X				X	X	14,7	2,28	2,00	0,36	1,092	27	49,25 ± 0,02	829,6 ± 1,3	12,2 ± 0,3
1367	X				X	X	13,6	2,33	2,07	0,35	1,093	27	60,53 ± 0,02	1020,2 ± 1,3	13,8 ± 0,3
1371*	X				X	X	13,2	2,28	2,03	0,33	1,090	27	69,74 ± 0,02	1175,8 ± 1,5	15,5 ± 0,3

* : influence due à la présence d'eau dans le réflecteur mobile

TABLEAU 4

EXPERIENCES CUVE PARALLELEPIPEDIQUE - REFLEXION TOTALE - CONFIGURATION DE LA FIGURE N° 5

RESULTATS EXPERIMENTAUX

Expériences N°	Réflecteur					Caractéristiques de la solution						Paramètres critiques		
	Piscine			Mobile										
	sans H_2O	Inférieur et latéral		sans H_2O	avec H_2O	verrouil. pion. hte	C (g/l Pu total) ± 1,5%	NO_3^- (N)	H^+ (N)	Fer (g/l)	Densité	Température ° C	Hc (cm)	Vc (l)	Mc kg de Pu total
		Hc	Hc + 20cm												
1350			X		X		19,7	2,35	1,98	0,46	1,101	27	28,31 ± 0,02	476 ± 1	9,4 ± 0,2
1351			X		X		18,7	2,32	1,97	0,42	1,099	27	30,16 ± 0,02	507 ± 1	9,5 ± 0,2
1356			X		X		17,7	2,30	1,97	0,41	1,097	26	32,40 ± 0,03	545 ± 1	9,7 ± 0,2
1357			X		X		16,7	2,30	1,99	0,38	1,096	26,5	35,58 ± 0,02	599 ± 1	10,0 ± 0,2
1362			X		X		15,8	2,31	2,01	0,38	1,094	26,5	39,67 ± 0,02	668 ± 1	10,6 ± 0,2
1363			X		X		14,7	2,28	2,00	0,36	1,092	27	45,84 ± 0,02	772 ± 1	11,4 ± 0,2
1368			X		X		13,6	2,33	2,07	0,35	1,093	27	57,25 ± 0,02	965 ± 1	13,1 ± 0,2
1369			X		X		13,2	2,28	2,03	0,33	1,090	27,5	66,34 ± 0,02	1118 ± 1	14,8 ± 0,2

TABLEAU 5

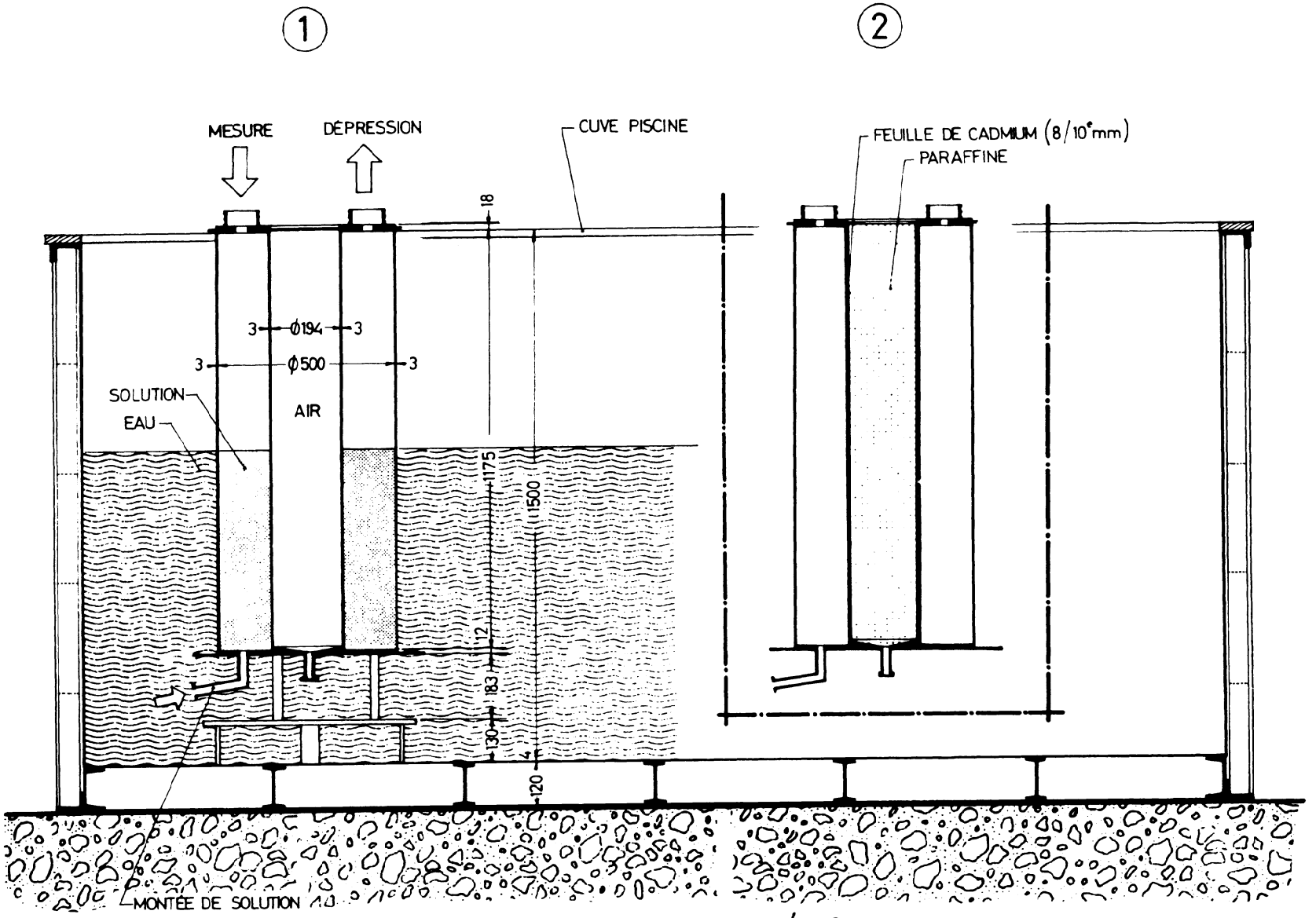
EXPERIENCES CUVE PARALLELEPIPEDIQUE - SOLUTIONS A DIFFERENTES ACIDITES -

RESULTATS EXPERIMENTAUX

Expériences N°	Réflecteur								Caractéristiques de la solution						Paramètres critiques		
	Piscine				Mobile												
	sans H_2O	Inférieur et latéral Hc	Inférieur et latéral Hc +20 cm		sans H_2O	avec H_2O	verrouil. pion. hte		C (g/l Pu total) + 1,5 %	NO_3^- (N)	H^+ (N)	Fer (g/l)	Densité	Température °C	Hc (cm)	Vc (l)	Mc kg de Pu total
1374		X			X		X		16,4	2,47	2,16	0,40	1,102	28	39,09 ± 0,02	658 ± 1	10,8 ± 0,3
1377		X			X		X		16,2	3,00	2,70	0,40	1,118	27,5	40,49 ± 0,02	681 ± 1	11,2 ± 0,3
1379		X			X		X		16,2	3,47	3,16	0,41	1,134	26,5	41,61 ± 0,02	701 ± 1	11,4 ± 0,3
1358*		X				X	X		16,7	2,30	1,99	0,38	1,096	26,5	37,07 ± 0,02	624 ± 1,1	10,4 ± 0,2
1375	X				X		X		16,4	2,47	2,16	0,40	1,102	28	40,82 ± 0,02	687 ± 1	11,3 ± 0,3
1378	X				X		X		16,2	3,00	2,70	0,40	1,118	27,5	42,24 ± 0,02	711 ± 1	11,5 ± 0,3
1380	X				X		X		16,2	3,47	3,16	0,41	1,134	25,5	43,41 ± 0,02	731 ± 1	11,8 ± 0,3
1359*	*					X	X		16,7	2,30	1,99	0,38	1,096	26,5	38,76 ± 0,02	652 ± 1,2	10,9 ± 0,3

* : influence due au réflecteur inférieur et latéral de la piscine

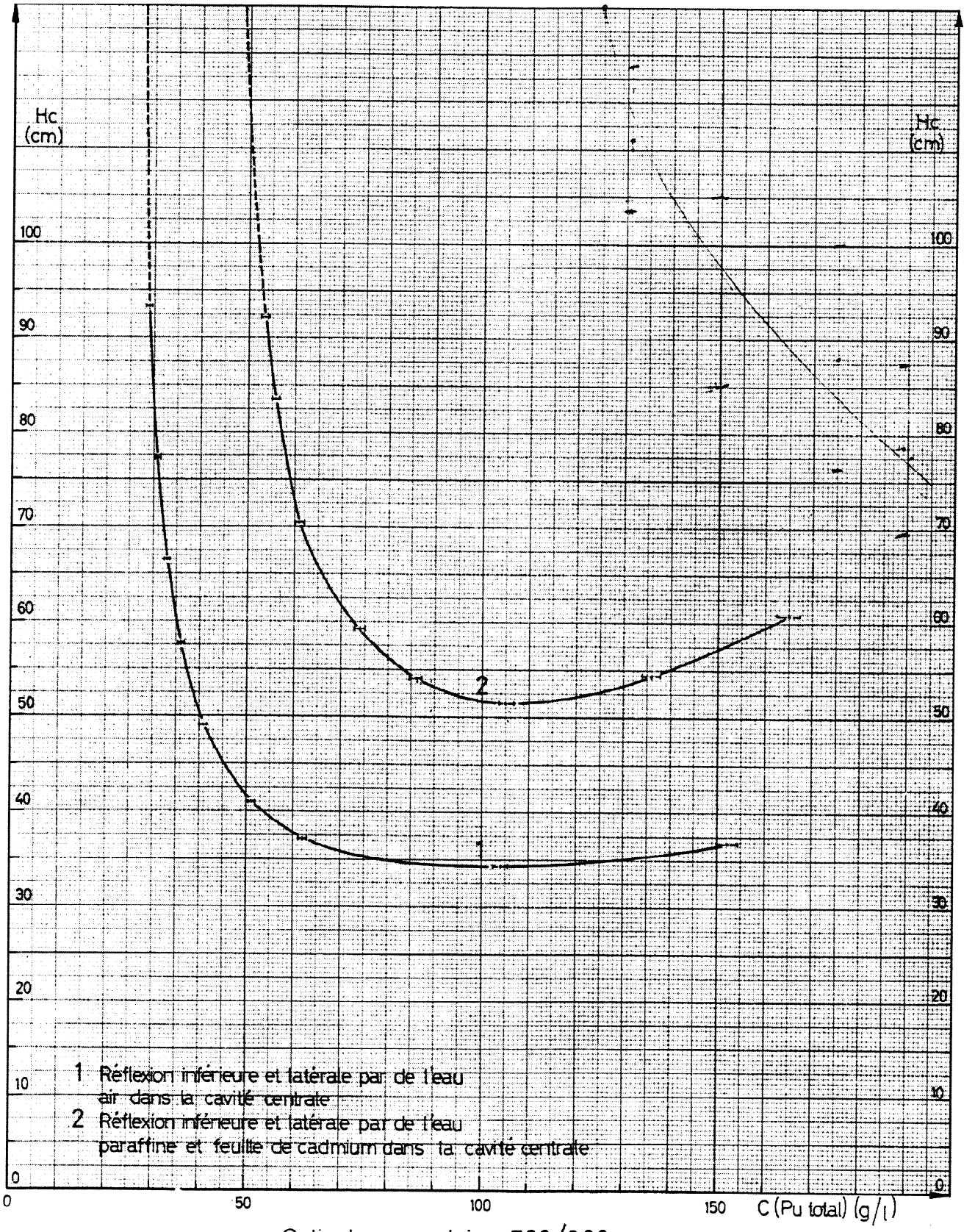
TABLEAU 6



Cylindre annulaire 500/200

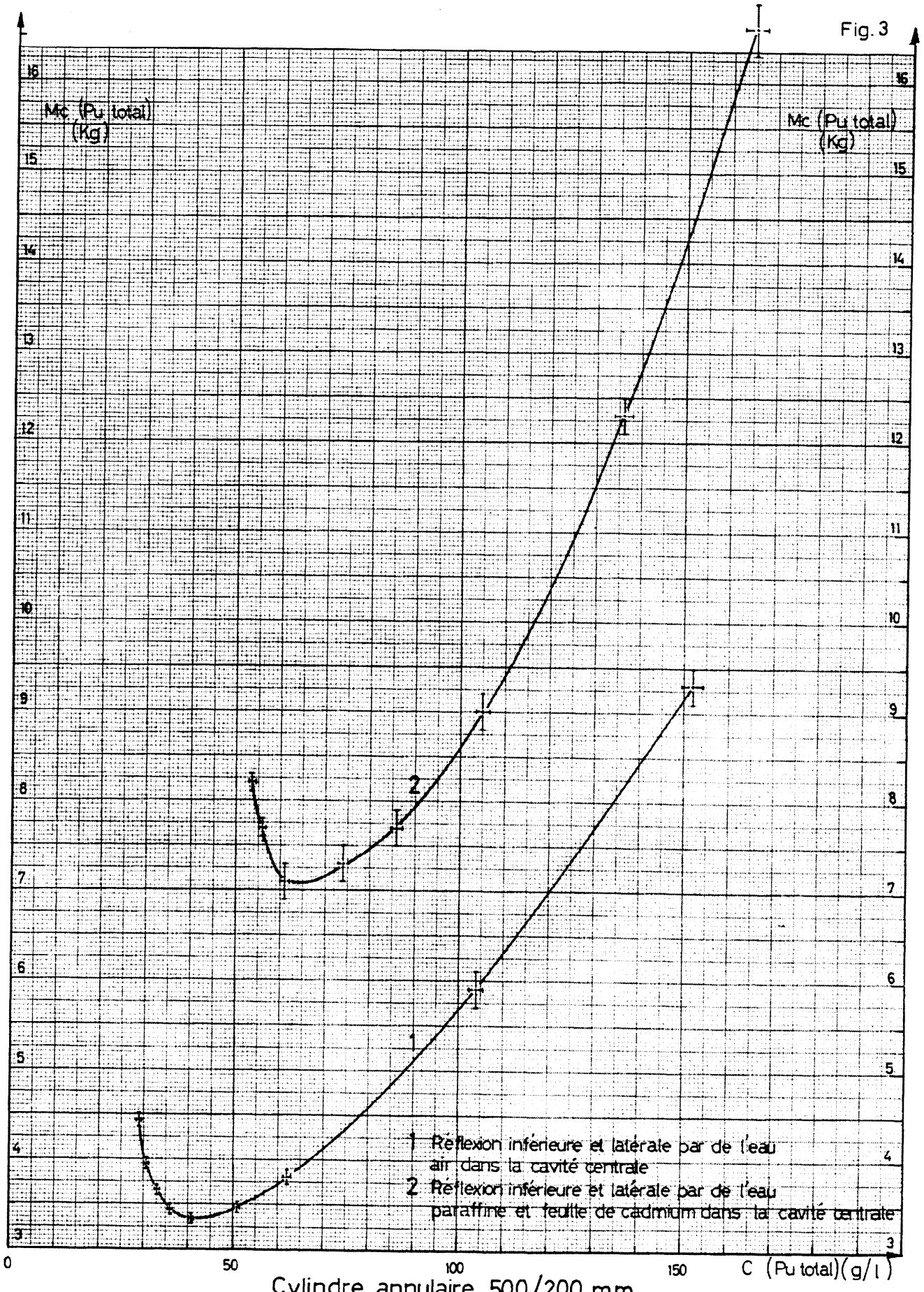
Fig. 1

Fig. 2



Cylindre annulaire 500/200 mm

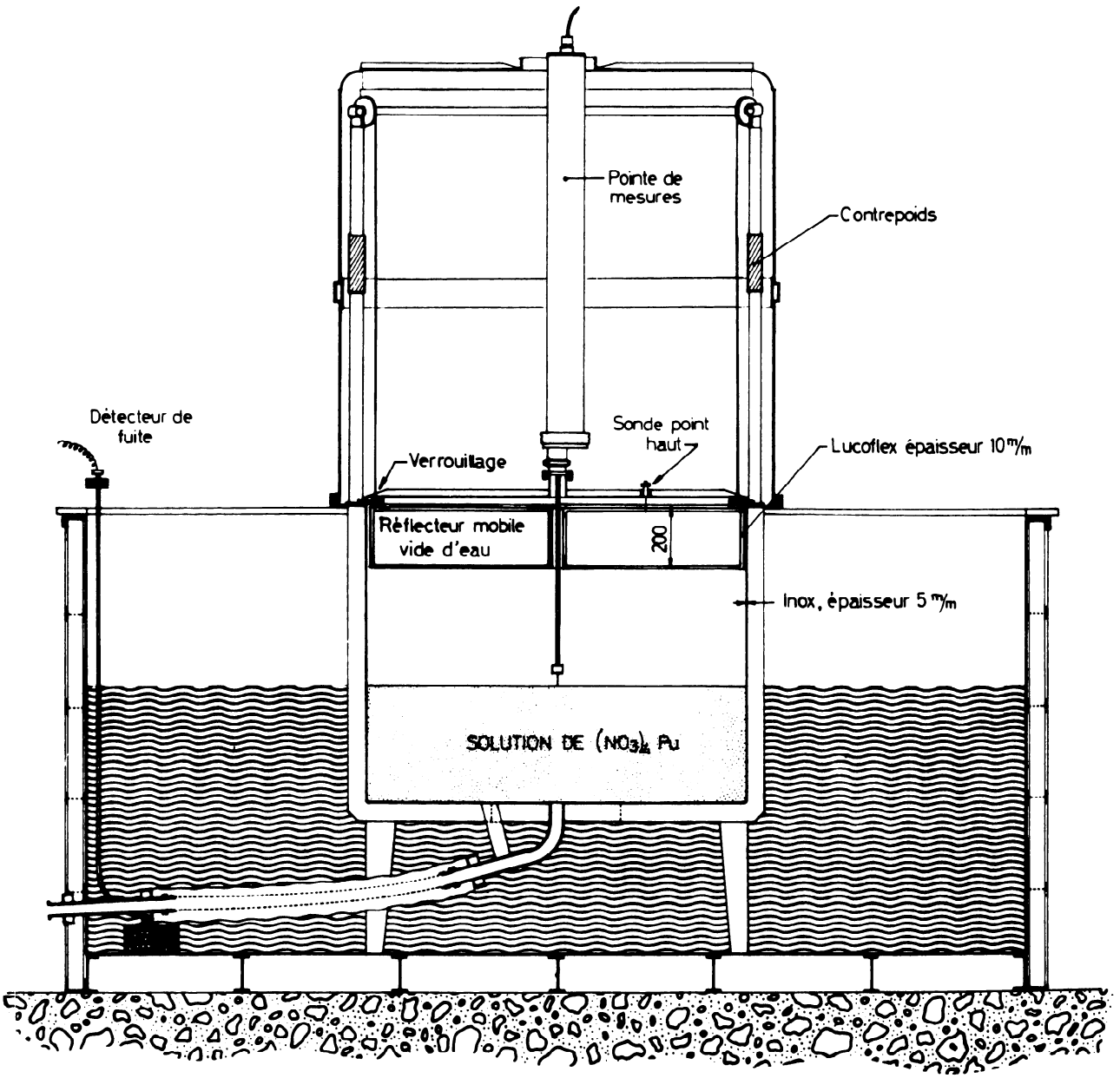
Hc = f(C)



Cylindre annulaire 500/200 mm

$Mc = f(C)$

Fig. 4



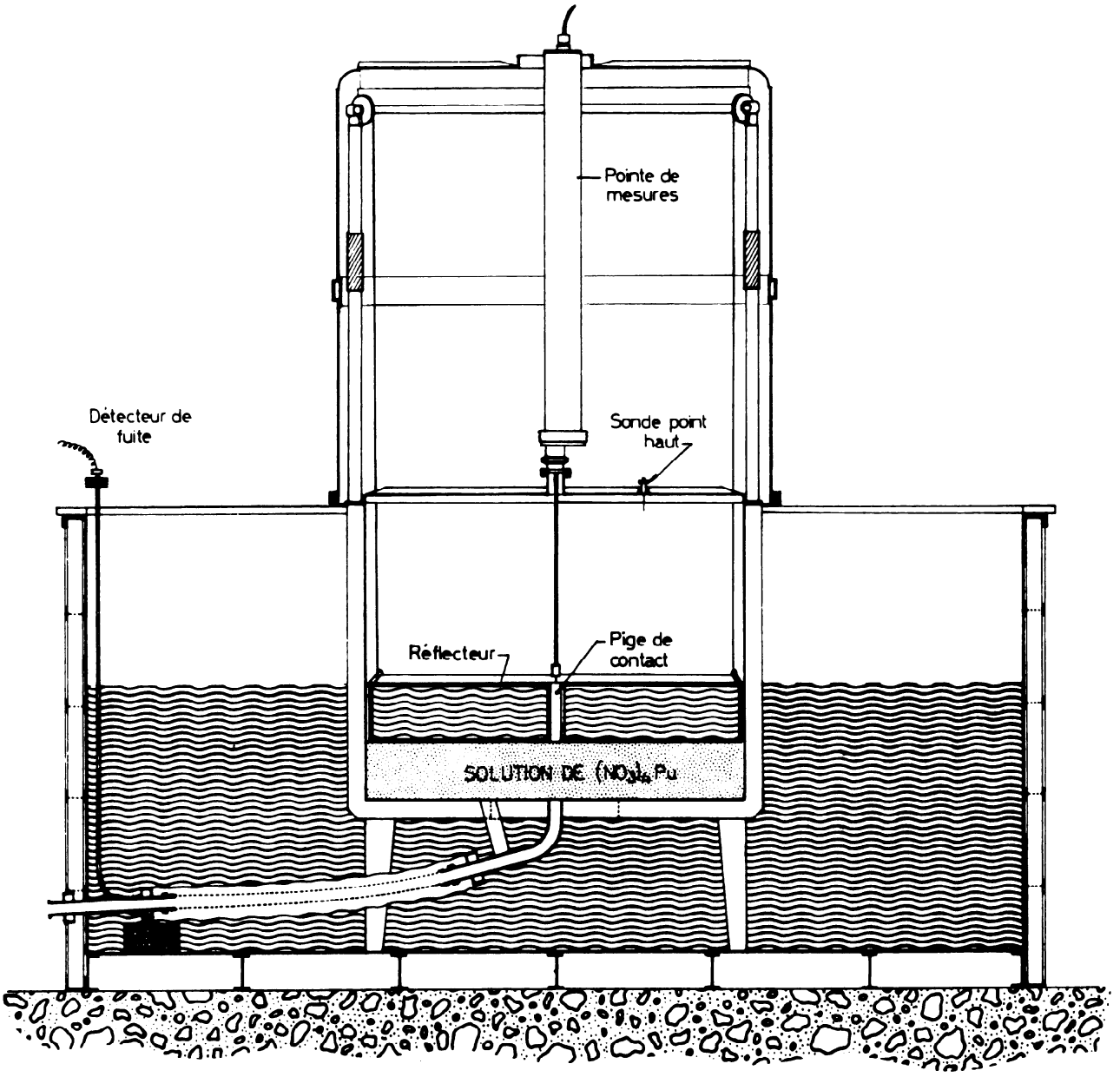
Dispositif expérimental

Cuve parallélépipédique 1300×1300×1000 m/m

Conditions expérimentales : Concentration de la solution plutonium > au minimum de masse critique

Réflecteur vide et verrouillé en position haute

Fig. 5

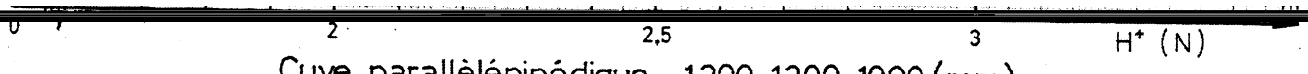


Dispositif expérimental

Cuve parallèlépipédique 1300 x 1300 x 1000 m/m

Conditions expérimentales : Concentration de la solution plutonium < au minimum de masse critique

Réflecteur plein d'eau se déplaçant avec le niveau de la solution

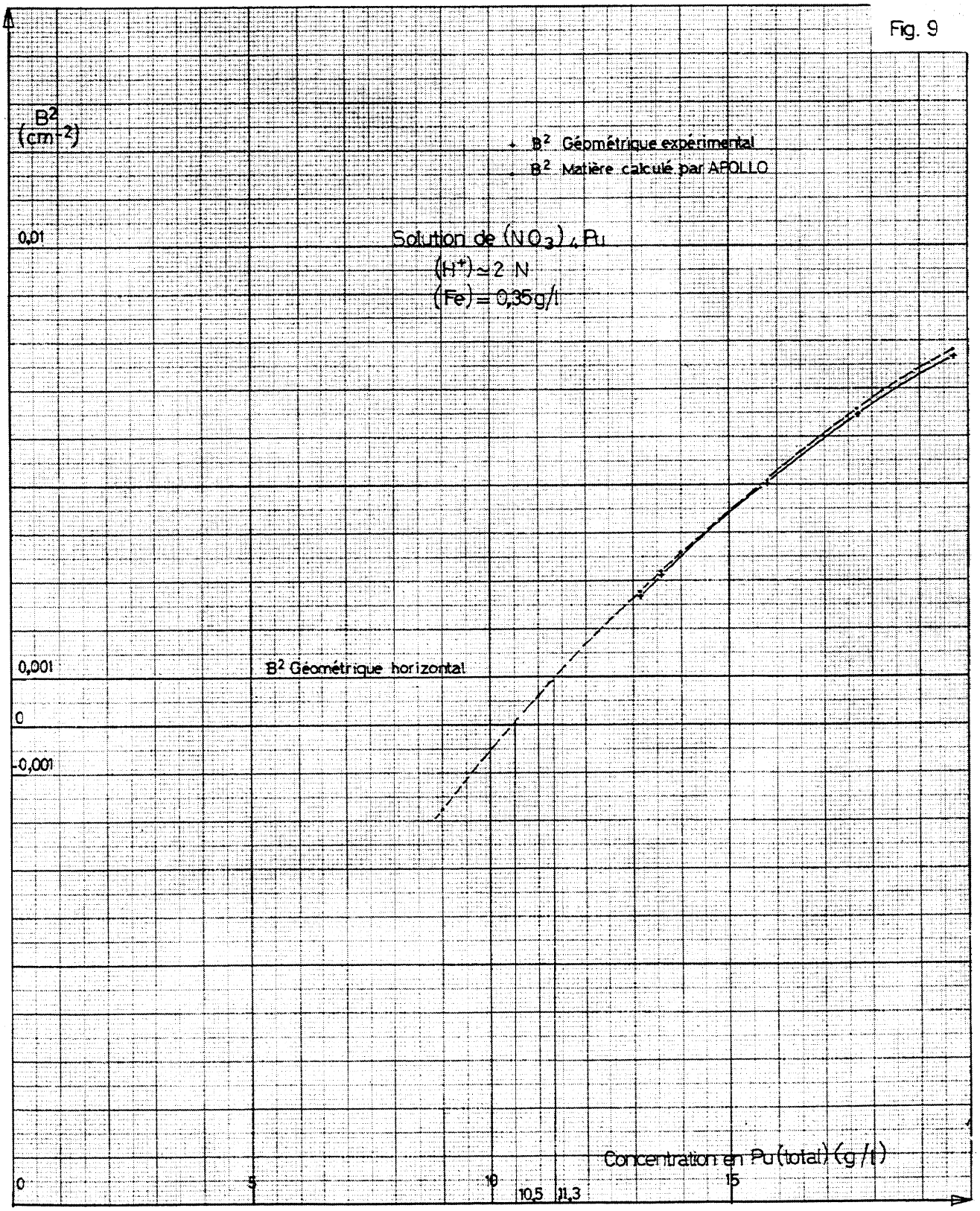


Cuve parallèlépipédique 1300×1300×1000 (mm)

Concentration Pu total ≃ 16,2g/l

$Hc = f(H^+)$

Fig. 9


B^2 (cm^{-2})
+ B^2 Géométrique expérimental
+ B^2 Matière calculé par APOLLO
Solution de $(NO_3)_4Pu$
$(H^+) \simeq 2$ N
$(Fe) = 0,35$ g/l
0,01
0,001
0
-0,001
B^2 Géométrique horizontal
Concentration en Pu (total) (g/l)
0
5
10
10,5
11,3
15

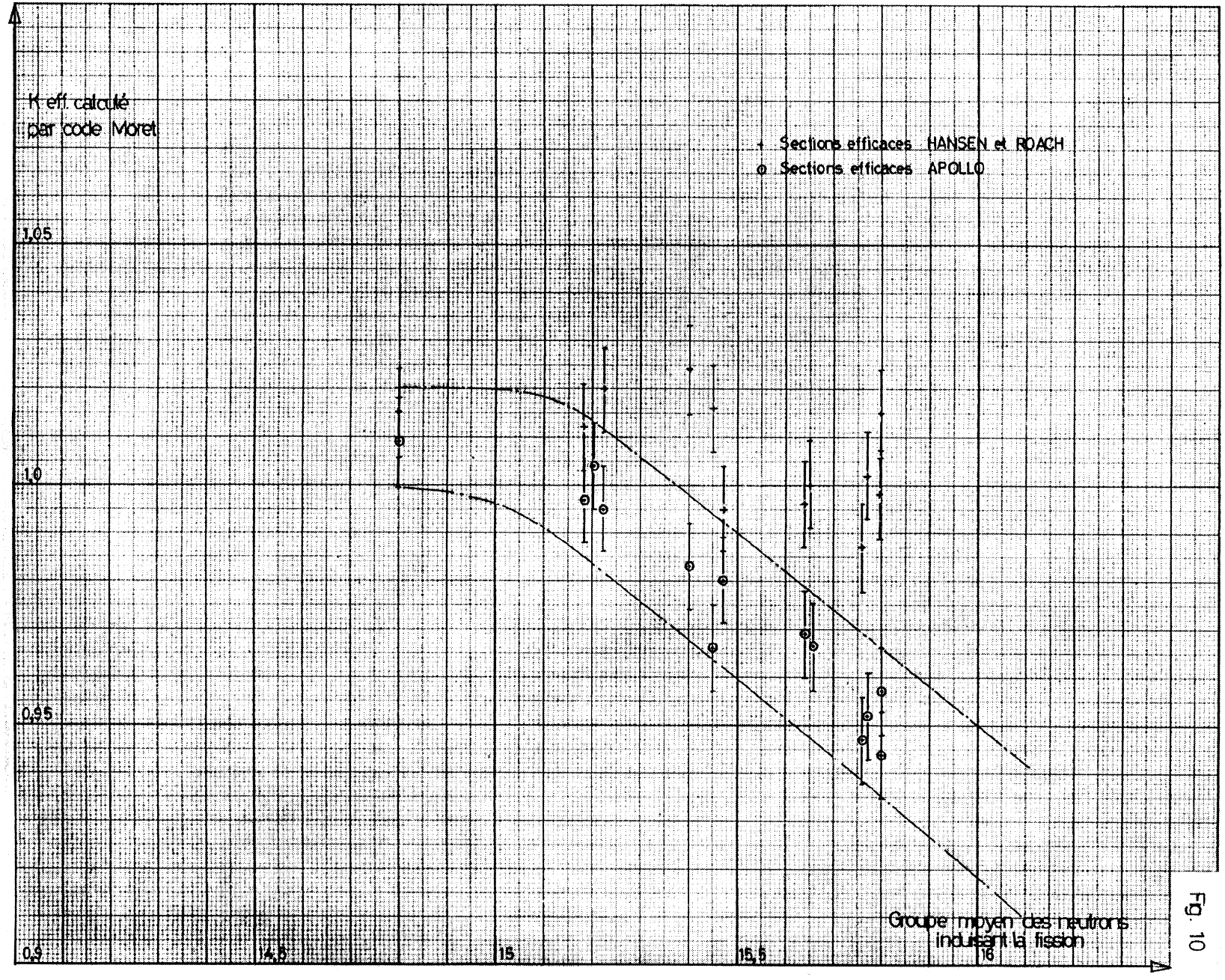

K eff. calculé
par code Moret
+ Sections efficaces HANSEN et ROACH
⊘ Sections efficaces APOLLO
1,05
1,0
0,95
0,9
14,5
15
15,5
16
Groupe moyen des neutrons
induisant la fission

Fig. 10