

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique



Université Hadj Lakhdar - BATNA 1

Faculté des Sciences de la Matière

Département de physique



# THÈSE

Présentée en vue de l'obtention du  
Diplôme de Doctorat

Par:

**Mohamed Cherif Khadidja**

Thème:

---

## **Calculs Neutroniques d'un Réacteur Nucléaire Naturel**

---

<i>Domaine</i>	: Sciences de la Matière
<i>Filière</i>	: Physique
<i>Spécialité</i>	: Matière, Rayonnements et Astrophysique
<i>Intitulé de la Formation</i>	: Formation 3 <sup>ème</sup> cycle (doctorat LMD, matière et rayonnements)

Soutenue le 17 / 03 / 2022

**Devant le jury :**

Président :	SID Abdelaziz	Professeur	Université de Batna-1
Rapporteur :	SEGHOOR Abdeslam	Directeur de recherche	CRNA - Alger
Examineurs :	BOULDJEDRI Abdelhamid	Professeur	Université de Batna-1
	BOUCENNA Ahmed	Professeur	Université de Sétif-1
	AISSAOUI Lamia	Maitre de conférence A	Université de Batna-1

## Remerciements

Je voudrais associer à mon travail toutes les personnes qui m'ont soutenu et conseillé pendant mes années de doctorat. Je souhaite avant tout remercier mon directeur de thèse Monsieur le professeur A. Seghour qui m'a fait confiance en me proposant ce sujet, je voudrais aussi le remercier pour le temps qu'il m'a consacré et la patience avec laquelle il a accompagné mon travail durant la préparation de cette thèse et surtout ses judicieux conseils qui ont contribué à réaliser ce travail.

Je désire aussi remercier Madame F.Z. Dehimi pour son soutien tout au long de ce travail. Elle m'a conseillé, encouragé et surtout elle a eu la patience de répondre à mes innombrables questions.

Je remercie Monsieur le professeur Sid Abdelaziz de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de soutenance. Je remercie également les professeurs Boucenna Ahmed, Bouldjedri Abdelhamid et Aissaoui Lamia pour avoir accepté d'être membres du jury. Je remercie par ailleurs le jury pour l'intérêt qu'il a manifesté envers mon travail.

Tous mes remerciements à l'équipe du CRNA qui m'a chaleureusement accueilli pendant mes années de doctorat.

Je tiens à remercier Monsieur S. Tobbeche de m'avoir donné l'opportunité d'aller au CRNA. Je le remercie aussi pour son aide, son soutien, son encouragement et ses conseils précieux pendant mes années de doctorat. Je remercie tous mes professeurs à l'université de Batna1.

Merci à tous ceux qui, de près ou de loin, m'ont apporté leurs soutiens et leurs encouragements.

Enfin, je tiens à remercier tous les membres de ma famille pour leur soutien pendant mes années d'étude.

## Résumé

La découverte d'une quinzaine de zones de réacteurs nucléaires naturels au Gabon (ouest de l'Afrique) reste un événement mystérieux où des réactions de fission nucléaire en chaîne ont eu lieu spontanément il y a 2 milliards d'années et se sont entretenues pendant assez longtemps en milieu naturel sans aucune contribution humaine. Le fonctionnement des réacteurs nucléaires naturels nécessiterait l'existence de quelques conditions principales à savoir une forte concentration d'uranium avec une abondance de l'uranium  $^{235}\text{U}$ , la présence d'eau souterraine jouant le rôle de modérateur et l'absence ou quasi-absence de poisons neutroniques. Ces conditions ont ouvert la voie à de nombreuses recherches dont la plupart ont été concentrées sur les zones du premier secteur (zone 1 à 6) notamment la plus grande zone (ZR2), mais les simulations disponibles à l'époque ne pouvaient pas expliquer l'occurrence de la criticité dans le plus petit réacteur (ZR9) et les autres zones 7 et 8 du deuxième secteur. Plus récemment, l'application du code MCNP a permis pour la première fois d'expliquer l'occurrence de la criticité dans un tel réacteur. Tous ces travaux étaient basés sur des études paramétriques. Dans le présent travail, nous proposons une nouvelle approche pour étudier les conditions d'occurrence de la criticité dans le réacteur ZR9 en utilisant des expressions analytiques reliant le facteur de multiplication effectif avec les paramètres les plus influents basés sur la théorie de la diffusion des neutrons à deux groupes. Un nouvel ensemble de paramètres influant correspondant aux configurations critiques est obtenu grâce à l'application de la méthode des plans d'expérience.

**Mots clés :** réacteur nucléaire naturel, criticité, théorie de diffusion à deux groupes, plans d'expérience.

## Abstract

The discovery of fifteen natural nuclear reactor zones in Gabon (West Africa) remains a mystery event where chain fission reactions took place spontaneously 2 billion years ago and have been sustained for quite a long time in a natural environment without any human contribution. The operation of the natural reactors depends upon the existence of conditions suitable to sustain fission we cite: a high concentration of uranium with abundance of  $^{235}\text{U}$ , a large amount of water in the pores and the absence or near absence of neutron poisons. These conditions opened the way to many researches most of which were focused on the zones of the first sector (zone 1 to 6) especially the largest zone RZ2, but the simulations that were available at that time could not explain the occurrence of criticality in the smallest reactor RZ9 and the other zones 7 and 8 for the second sector. Most recently, the application of the Monte Carlo code MCNP has allowed for the first time to explain the occurrence of criticality in such reactor. All the previous works were based on a parametric studies. In the present work, we suggest a new approach to

investigate the criticality occurrence conditions in RZ9 using analytical expressions relating the effective multiplication factor ( $k_{eff}$ ) and the most influential parameters based on the diffusion theory with two groups. The dependence of  $k_{eff}$  on the influential parameters was investigated by means of the design of experiments method in order to establish a new set of limit values corresponding to critical configurations.

**Keywords:** natural nuclear reactor, criticality, neutron diffusion theory, design of experiments.

## ملخص

لا يزال اكتشاف حوالي 15 مفاعلا نوويا طبيعيا في الغابون (غرب افريقيا) حدثا مهما و مثيرا للتساؤلات , حيث ان تفاعلات انشطار نووية حدثت تلقائيا منذ ملياري سنة و استمرت لمدة طويلة في بيئة طبيعية دون تدخل بشري. لا شك ان عمل هذه المفاعلات النووية الطبيعية تطلب توفر مجموعة من الشروط المناسبة لضمان استمرارية تفاعلات الانشطار النووي لعل اهمها : وجود تركيز عال لليورانيوم لايقاد المفاعلات مع توفر نسبة كافية من النظير  $^{235}U$ , توفر كمية كبيرة من الماء الذي لعب دورا مهما كمهدئ للنترونات حتى تتمكن من التفاعل مع ذرات اليورانيوم 235 و ايضا لا بد من غياب او قلة تركيز المواد الاسرة للنترونات و التي تدعى بسموم النترونات حيث يعد هذا شرطا اساسيا لادامة التفاعلات الانشطارية المتسلسلة. هذه الشروط التي توفرت تلقائيا قبل ملياري سنة فتحت المجال امام العديد من الابحاث التي تركز اغلبها حول مفاعلات المنطقة الاولى و التي رقت من 1 الى 6 و لعل اشهر هذه الاعمال كان حول المفاعل رقم 2 « RZ2 » الذي يعد من اكبر المفاعلات , غير ان برمجيات المحاكاة التي كانت متوفرة خلال فترة اكتشاف هذه المفاعلات لم تستطع بقدر كاف تفسير حدوث الحالة الحرجة في اصغر المفاعلات « RZ9 » و كذلك بقية المفاعلات 7 و 8 التي تعد ضمن المنطقة الثانية. حديثا و مع تطور وسائل البرمجة و المحاكاة مكن تطبيق برنامج MCNP و للمرة الاولى من تفسير ظهور الحالة الحرجة في المفاعل RZ9. ان اغلب الاعمال السابقة كانت تركز على طريقة واحدة يتم من خلالها دراسة معامل التضاعف الفعال ( $k_{eff}$ ) بدلالة متغير واحد مع تثبيت بقية المتغيرات عند قيمة محددة و هكذا تستمر العملية مع بقية العوامل المؤثرة. في هذا العمل نقترح نهجا جديدا بغية التحقق من شروط حدوث الحالة الحرجة في المفاعل RZ9 نستخدم فيه عبارات تحليلية تربط بين معامل التضاعف الفعال و بقية العوامل الاكثر تأثيرا بالاعتماد على نظرية الزمرتين للانتشار ليتم فيما بعد التحقق من ارتباط ( $k_{eff}$ ) بهذه العوامل من خلال استخدام طريقة تصميم التجارب « Design Of Experiments method » من اجل انشاء مجموعة جديدة من شروط حدوث الحالة الحرجة في المفاعل RZ9.

**الكلمات المفتاحية :** المفاعلات النووية الطبيعية, الحالة الحرجة, نظرية انتشار النترونات, طريقة تصميم التجارب.

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre 1 : Présentation du phénomène d'Oklo</b>	<b>5</b>
1. La découverte des réacteurs nucléaires d'OKLO.....	6
2. Les gisements d'uranium au Gabon.....	7
2.1.Histoire géologique.....	7
2.2.Description des gisements d'uranium.....	8
2.3.Stratigraphie du bassin de Franceville.....	10
3. Les zones de réaction nucléaire.....	15
3.1.La position structurale des zones de réaction d'Oklo.....	12
3.2.principaux paramètres des zones de réaction.....	13
3.3.La zone de réaction n°9 (ZR9).....	13
4. Les principaux événements survenus pendant le fonctionnement des réacteurs nucléaires naturels.....	16
5. La réaction de fission nucléaire.....	17
5.1.Principe de la fission nucléaire.....	18
5.2.Les produits de fission.....	19
5.2.1. Les fragments de fission (FF).....	19
5.2.2. Les neutrons de fission.....	20
5.2.3. L'énergie de fission.....	22
5.3.La réaction en chaine.....	23
5.3.1. facteur de multiplication de la réaction en chaine.....	23
5.4.Sections efficaces.....	24
5.4.1. Types d'interaction des neutrons avec la matière.....	25
5.4.2. Allure des sections efficace neutroniques.....	26
5.5.Comparaison entre un réacteur industriel et un réacteur naturel d'Oklo.....	29
<b>Chapitre 2: Rappels de neutronique</b>	<b>33</b>
1. Introduction.....	34
2. Etablissement de l'équation de Boltzmann.....	34
2.1. Les principales hypothèses sur le transport des neutrons.....	34

2.2. Quelques définitions fondamentales pour le transport des neutrons .....	35
2.3. L'équation de Boltzmann .....	36
2.3.1. Les réactions de production des neutrons .....	36
2.3.1.1. Apparition par diffusion .....	36
2.3.1.2. Source de neutrons .....	37
2.3.2. Le terme de perte des neutrons .....	38
2.3.2.1. Perte par absorption ou diffusion .....	39
2.3.2.2. Perte par fuite .....	39
3. Approximation de la diffusion .....	42
3.1. Les conditions de validité de l'équation de diffusion .....	43
3.2. Equation de la diffusion pour des neutrons monocinétiques .....	43
3.3. L'équation de la diffusion pour un état stationnaire .....	44
4. Théorie de diffusion multi-groupes .....	45
4.1. L'équation de diffusion à deux groupes .....	46

### **Chapitre 3 : Etude neutronique de la zone ZR9 d'Oklo** **51**

1. Introduction .....	52
2. Définition du modèle géométrique et physique du ZR9 .....	52
2.1. Définition du modèle géométrique .....	52
2.1.1. Cœur cylindrique sans réflecteurs .....	53
2.1.2. Cœur cylindrique avec réflecteurs .....	53
2.2. Définition du modèle physique .....	54
2.2.1. Détermination de la masse volumique du minerai .....	56
2.2.2. Détermination de la densité atomique .....	57
2.2.3. Définition du domaine de variation des paramètres physiques .....	57
3. Application de l'équation de diffusion à deux groupes pour un cœur cylindrique .....	60
3.1. Cas du milieu multiplicateur homogène de forme cylindrique sans réflecteurs .....	62
3.1.1. Méthode de calcul .....	65
a. Détermination du facteur de multiplication infini $k_{\infty}$ .....	65
b. Détermination des longueurs de diffusion .....	68
c. Calcul du facteur de multiplication effectif .....	70
3.2. Cas du milieu multiplicateur homogène de forme cylindrique avec réflecteurs .....	70

3.2.1. Solution des équations de diffusion dans le cœur .....	70
3.2.2. Solution des équations de diffusion dans le réflecteur .....	72
a. Le réflecteur latéral .....	73
b. Le réflecteur axial.....	77
3.2.3. La condition de continuité.....	78
3.2.4. Evaluation de la condition critique pour un réacteur cylindrique réfléché .....	80
a. Condition de continuité entre le cœur et le réflecteur axial .....	80
b. Condition de continuité entre le cœur et le réflecteur latéral .....	80
c. Définitions des réflecteurs.....	81

**Chapitre 4 : Introduction à la méthode des plans d'expériences 84**

1. Introduction .....	85
2. La méthode des plans d'expériences .....	86
a. Les facteurs quantitatifs .....	87
b. Les facteurs qualitatifs .....	87
c. Les facteurs contrôlés et non contrôlés .....	87
d. Domaine d'un facteur.....	88
2.1. Domaine d'étude .....	88
2.2. Codage des paramètres.....	89
2.3. Choix du plan d'expérience.....	90
2.4. Choix du modèle mathématique.....	90
2.5. Analyse mathématique .....	91
3. Les plans factoriels.....	92
3.1. Plan factoriel complet.....	92
3.2. L'orthogonalité.....	95
3.3. Plan factoriel fractionnaire .....	95
3.3.1. Construction d'un plan fractionnaire.....	96
4. Plans pour surfaces de réponse.....	98
4.1. Plan de Box-Behnken.....	99
4.2. Plan de Doehlert .....	99
4.3. Plan composite centré.....	99
4.3.1. la position des points en étoile .....	100
4.3.2. Plan composite à face centrée .....	102
5. Analyse statistique.....	102

5.1. Validation du modèle .....	103
5.1.1. Coefficient de détermination .....	103
5.1.2. Test de Fisher (F) .....	103
5.2. Vérification de la signification des coefficients .....	104
6. Analyse graphique .....	104
6.1. Diagramme des effets .....	105
6.2. Diagramme des coefficients .....	105
6.3. Graphe d'adéquation du modèle .....	105
6.4. Surface de réponse .....	105
6.5. Les courbes d'iso-réponse .....	105
7. Validation du modèle .....	107

**Chapitre 5 : Application de la méthode des plans d'expérience à l'étude de la criticité de ZR9 à Oklo** **108**

1. Introduction .....	109
2. Application d'un plan factoriel complet à deux niveaux .....	109
2.1. Formalisation du problème .....	109
2.1.1. Définition de l'objectif .....	109
2.1.2. Définition de la réponse .....	109
2.1.3. Définition des facteurs .....	109
2.1.4. Définition du domaine d'étude .....	110
2.2. Construction du plan d'expérience .....	111
2.3. Définition du modèle mathématique .....	111
2.3.1. Matrice du modèle .....	112
2.4. Réalisation des essais .....	114
2.5. Calcul des coefficients du modèle .....	115
2.6. Analyse statistique du modèle .....	116
2.7. Analyse graphique .....	117
2.7.1. Diagramme des effets .....	117
2.7.2. Diagramme des interactions .....	118
3. Application du plan composite centré à l'étude de la criticité du ZR9 .....	119
3.1. Domaine d'étude .....	120
3.2. Modèle mathématique .....	120



3.3. Matrice d'expérience complémentaire et matrice du modèle pour le modèle du second degré .....	121
3.4. Estimation du modèle mathématique .....	121
3.4.1. Cas du réacteur sans réflecteurs .....	121
3.4.2. Cas du réacteur avec réflecteurs .....	125
3.4.2.1. Matrice d'expérience et résultats obtenus .....	126
3.4.2.2. Courbes d'iso-réponses .....	127
<b>Conclusion</b>	<b>131</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>134</b>
<b>Liste des figures</b>	<b>141</b>
<b>Liste des tableaux</b>	<b>142</b>
<b>Annexes</b>	<b>143</b>

---

## **Introduction générale**

---

Le progrès de la science que nous connaissons aujourd'hui est lié à la curiosité et à la recherche de comprendre les phénomènes naturels afin de déduire les règles et lois fondamentales qui les régissent. Parmi ces phénomènes on cite le phénomène d'Oklo qui présente une particularité unique en physique neutronique et une curiosité géologique regroupées ensemble sous forme de réacteurs nucléaires naturels et de dépôts géologiques pour les déchets radioactifs. Ces réacteurs nucléaires naturels ont fonctionné dans un lointain passé sur le même principe de ceux qui sont réalisés de nos jours par l'homme depuis qu'Enrico Fermi a inventé son réacteur nucléaire de fission en 1942 et qui était considéré comme le premier réacteur nucléaire de fission.

Le phénomène de réaction en chaîne entretenu dans un milieu naturel n'a pu à l'heure actuelle être attesté que sur les sites uranifères d'Oklo et de Bangombé au Gabon et aucun autre phénomène similaire n'a été démontré ailleurs. La découverte de ce phénomène a suscité un nombre impressionnant de recherches et de mesures expérimentales de répartitions des produits de fission sur site, qui viennent corroborer l'hypothèse de Yakura, émise en 1923, sur la possibilité théorique de déclenchement spontané des réacteurs de fission en chaîne dans des gisements d'uranium dans un passé lointain sous un certain nombre de conditions : une forte concentration d'uranium pour atteindre la masse critique nécessaire au démarrage d'une réaction de fission en chaîne, la présence d'eau en quantité suffisante et l'absence d'éléments absorbants de neutrons. Avant 2 milliard d'années, l'âge estimé des gisements d'uranium à Oklo, ces conditions étaient réunies sur le site géologique d'Oklo. À cette époque, le taux d'uranium <sup>235</sup> présents dans l'uranium naturel était beaucoup plus important (3%) qu'aujourd'hui (0.72%). Puisque la période de l'uranium <sup>235</sup> est plus courte que celle de l'uranium <sup>238</sup>, il se désintègre plus vite et son taux augmente au fur et à mesure que l'on remonte dans le temps. De plus, un ensemble de conditions favorables, présence d'eau principalement, ont fait que ce phénomène a pu se produire et se maintenir durant une longue durée.

Cette hypothèse a pris un regain d'intérêt à partir de 1972 lorsque des réacteurs fossiles ont pu être observés sur le site minier d'Oklo suite à des travaux de prospections minières. L'analyse systématique des témoins minéralogiques provenant du minerai permettait de trouver des anomalies dans la répartition de l'abondance naturelle des plusieurs isotopes et en particulier ceux de l'uranium. Le spectre des produits de fission et leurs répartitions par masse

atomique a constitué un indice indiscutable que des fissions nucléaires ont effectivement eu lieu dans le site d'Oklo.

Seize (16) réacteurs nucléaires naturels ont fonctionné à Oklo pendant plusieurs centaines de milliers d'années. La découverte de ce phénomène a fait l'objet de plusieurs études géologiques et physiques afin de répondre à plusieurs questions dont la principale portait sur les conditions de démarrage de réacteurs. Les premiers rapports de recherches sont apparus à l'automne 1972.

La poursuite des études a mis en évidence l'intérêt des études neutroniques détaillées dont les plus approfondies ont été réalisées par Naudet sur la zone de réaction n°2 considérée comme la plus grande zone de réaction. Il a étudié l'effet de l'âge du gisement, de la teneur en uranium et du volume de la zone de réaction sur l'occurrence de la criticité en utilisant des outils mathématiques et informatiques disponibles pendant la période des années 70, notamment le code binocle (Bilan Neutronique Oklo) développée par Naudet et Filip (*R.Naudet et Filip, 1975*).

Cependant l'occurrence de la criticité dans certaines zones de réactions identifiées comme des petits réacteurs tels que le réacteur ZR9 est resté une question ouverte. Plus récemment et avec le développement des outils informatiques, une approche probabiliste basée sur l'application du code MCNP a été utilisée. Ce code a permis d'une manière assez fidèle d'expliquer pour la première fois l'occurrence de la criticité dans la zone de réaction n°9 (ZR9).

Plusieurs méthodes sont disponibles pour étudier la criticité des réacteurs nucléaires et sont de nature numérique comme les méthodes Monté Carlo ou de nature analytique basée sur l'équation de diffusion qui représente une approximation de l'équation du transport établie par L. Boltzmann.

Dans le cadre de trouver des nouvelles configurations critiques de la zone de réaction ZR9 sans utilisation des codes numériques connus, nous proposons dans ce travail une nouvelle approche afin de trouver une expression analytique qui relie le facteur de multiplication effective avec les paramètres les plus influents sur la criticité en se basant sur la théorie de diffusion. Un nouvel ensemble de paramètres influents est obtenu grâce à l'application de la méthode d'analyse statistique des plans d'expérience.

Le présent travail est scindé en cinq chapitres. Le premier chapitre est divisé en deux parties ; dans la première partie nous allons présenter d'une manière générale le phénomène

d'Oklo en focalisant l'intérêt sur la zone de réaction n°9 et sa particularité par rapport aux autres zones. Dans cette partie, une brève description géologique des gisements d'Oklo est faite afin de mettre le lecteur dans un contexte général du phénomène mais suffisant pour la compréhension du reste du travail. La deuxième partie est consacrée à la description de la réaction de fission nucléaire sans oublier la classification des neutrons, leurs différents types d'interaction avec la matière et une brève comparaison entre les réacteurs naturels et les réacteurs industriels (REP) en termes d'enrichissement en  $^{235}\text{U}$ , de conditions de pression et de température et de la nature du modérateur.

Le second chapitre donne un rappel sur la neutronique. Nous introduisons l'équation de transport des neutrons ainsi que l'approximation de la diffusion basée sur la théorie de diffusion à deux groupes qui sera appliquée dans le chapitre suivant.

Le troisième chapitre est dédié à l'application des équations de la diffusion neutronique à l'étude de la criticité de ZR9 en démontrant la relation qui relie le facteur de multiplication effective avec les principaux paramètres décrivant la zone n°9. Cela nécessite une modélisation géométrique et physique de la zone à étudier en procédant à un choix judicieux des intervalles de définitions de chaque paramètre afin de reproduire les conditions initiales du déclenchement de la réaction en chaîne.

Le quatrième chapitre de cette thèse traite de la théorie sur les plans d'expériences. Après avoir montré l'intérêt de cette méthode par rapport à la méthode classique « une variable par étape », nous décrivons les éléments nécessaires pour son utilisation pour la première fois à l'étude de la criticité du ZR9. Puis nous présentons les deux types des plans d'expérience que nous avons choisis d'utiliser, à savoir les plans factoriels complets et les plans à surface de réponse, sans oublier d'aborder brièvement les méthodes d'analyses statistiques afin de vérifier la qualité des résultats obtenus.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre est consacré aux différents résultats obtenus en appliquant la méthode des plans d'expérience dans le but est de chercher s'il y a d'autres conditions critiques qui conduisent au fonctionnement de ZR9 en mode critique dans les conditions géologiques réelles. L'application de cette méthode nous permet aussi d'étudier l'effet des différents paramètres influents sur la criticité de ZR9 ainsi que leurs interactions.

---

## **Chapitre 1 : Présentation du phénomène d'Oklo**

---

## 1. La découverte des réacteurs nucléaires d'OKLO

La découverte du premier réacteur nucléaire naturel au GABON (*Bodu et al, 1972 ; Neuilly et al, 1972*) était l'un des événements les plus captivants dans la physique des réacteurs nucléaires depuis qu'Enrico Fermi et ses collègues ont réalisé en 1942 une réaction en chaîne de fission auto-entretenu. Pendant 30 ans, la communauté scientifique a pensé que la maquette critique d'Enrico Fermi, dite pile CP1 (Chicago Pile number 1), est le premier réacteur nucléaire sur Terre.

La possibilité qu'une réaction de fission d'uranium naturel pouvait avoir eu lieu avait été discutée de manière théorique proche de la spéculation par de nombreux scientifiques. En 1941 Yakov Borisovich Zeldovich est le premier physicien ayant affirmé qu'il aurait été plus facile de réaliser une réaction nucléaire en milieu naturel il y a de cela plusieurs milliards d'années (*Petrov et al, 2006*). Il a été spéculé sur la possibilité d'obtenir une réaction de fission en chaîne dans un mélange homogène d'uranium naturel et d'eau à des époques plus anciennes de plus de 2 milliards d'années en raison de la concentration élevée de l'isotope  $^{235}\text{U}$  en ces temps-là.

En 1953, G. Wetherill et M. Inghram sont arrivés à la même idée (*Wetherill, 1953*). Sur la base de la concentration d'uranium de pechblende, ils ont conclu qu'il y a 2 milliards d'années, lorsque la fraction de l'isotope  $^{235}\text{U}$  dépassait 3%, les conditions de concentration de la matière fissile pouvaient conduire à un régime de criticité neutronique. Trois ans plus tard, en 1956, P. Kuroda a discuté la possibilité qu'un système nucléaire relativement instable puisse avoir lieu dans un milieu naturel riche en uranium (*Kuroda, 1956*). Il a montré que le facteur de multiplication des neutrons dans un milieu infini pouvait être supérieure à 1 et une réaction en chaîne spontanée conduisant à un régime de fission en chaîne entretenu était possible en milieu naturel. Kuroda a souligné qu'une quantité suffisante d'eau, nécessaire pour modérer la vitesse des neutrons de fission existait autour des minerais d'uranium après leur cristallisation. De plus, il y a 700 millions d'années, la concentration relative en  $^{235}\text{U}$  était le double de la concentration actuelle et pouvait atteindre presque 8 fois la concentration actuelle pendant la période précambrienne il y a 2000 millions d'années. En considérant ces deux facteurs, Kuroda a pu montrer que pendant la période précambrienne l'uranium naturel avait été totalement capable de produire une réaction nucléaire en chaîne dans des conditions naturelles. Toutefois, aucune trace de l'existence d'un réacteur naturel n'a été trouvée jusqu'en 1972.

Le 6 juin 1972, lors d'une analyse de routine par spectrométrie de masse des échantillons de minerai extrait des gisements d'Oklo, H. Bouzigues découvre que l'uranium de ces

gisements contient 0.71% de l'isotope  $^{235}\text{U}$  au lieu de la valeur normale qui est de 0.72% (Bouzigues et al, 1975). Cet écart relatif de quelques millièmes par rapport à la concentration nominale sort des limites de l'erreur de mesure. Soupçonnant une erreur de mesure ou une contamination de prélèvement, un second prélèvement a été effectué pour une seconde analyse isotopique. Le résultat a révélé une anomalie encore plus grande avec une valeur de 0.70 %. Des séries de contrôles ont été effectuées pour finalement aboutir à la conclusion qu'il ne s'agissait pas d'une erreur de mesure mais qu'il avait là de l'uranium dont la composition était différente de celle de l'uranium *normal*.

L'idée, avancée par les chercheurs du commissariat à l'énergie atomique français, était que l'appauvrissement en isotopes  $^{235}\text{U}$  avait été causé par une réaction en chaîne survenue il y a très longtemps. De plus, la distribution des masses des produits de fission dans les gisements d'Oklo constitue un indice indiscutable que des réactions de fissions nucléaires ont bien eu lieu (Dozol et Neuilly, 1975). A l'aide de diverses méthodes de datation, il a été conclu que le gisement d'uranium d'Oklo s'est formé il y a environ deux milliard d'années. A cette époque la teneur en uranium 235 était beaucoup plus élevé par rapport à maintenant.

Un réacteur nucléaire naturel nécessiterait quelques conditions principales pour fonctionner, à savoir : un combustible, un modérateur, des réflecteurs et un moyen d'évacuer la chaleur générée. Une forte concentration locale d'uranium, un enrichissement de plus de 3%, une absence de matériaux fortement absorbeurs de neutrons et une présence d'eau souterraine jouant le rôle de modérateur, prédominaient il y a deux milliard d'années dans les gisements d'uranium d'Oklo.

## **2. Les gisements d'uranium au Gabon**

### **2.1. Histoire géologique**

La formation géologique dans laquelle se trouvent les gisements uranifères du Gabon a reçu le nom de Franceville qui est une série detrique et volcano-sédimentaire non métamorphique du précambrien moyen qui se situe dans la partie sud-est de la république du Gabon et qui occupe une surface d'environ 3500 Km<sup>2</sup> (Fig.1) (Ruffenach, 1979 ; Gauthier-Lafaye, 1986). L'analyse radiogénique *U-Pb* a montré que les gisements d'uranium dans la couche sédimentaire ont été formés il y a deux milliard d'années. Durant cette époque, un processus biologique important a eu lieu (Petrov et al, 2006). Les procaryotes (micro-organismes unicellulaires ayant une simple membrane et privées de noyau) ont été transformés en eucaryotes unicellulaires plus complexes. Ces dernières ont commencé à absorber le gaz



dioxyde de carbone de manière intensive saturant l'atmosphère terrestre avec de l'oxygène. A cause de l'apparition de l'oxygène libre dans l'atmosphère avec des quantités appréciables, les eaux de surface et souterraines deviennent oxydantes et elles ont pu dissoudre l'uranium en l'oxydant de la valence IV à la valence VI en le rendant ainsi plus soluble. Sous l'action des conditions réductrices par la présence de la matière organique, qui se trouve dans les gisements d'hydrocarbures, l'uranium a pu se précipiter en  $UO_2$  à forte concentration en conduisant à la formation des gisements d'uranium du bassin de Franceville. C'est donc dans les gisements d'hydrocarbures traversés par les eaux oxydantes riches en uranium que se sont formées les zones minéralisées (Gauthier-Lafaye, 2002 ; Gauthier-Lafaye and Weber, 2003 ; Gauthier-Lafaye, 2006).



Figure 1.1 La situation géographique du Gabon

### 2.2. Description des gisements d'uranium

Le bassin de Franceville présente des gisements d'uranium et qui se répartissent en trois principaux secteurs géographique (Gauthier-Lafaye, 1986 ; Bentriddi, 2012) : le secteur de Mounana, le secteur de Bangombé et le secteur de Franceville. Le secteur de Mounana se situe dans une zone de bordure du bassin, le secteur de Franceville se situe dans une zone centrale et le secteur de Bangombé en une zone intermédiaire. L'uranium n'est pas également réparti dans ces zones, la plus grande partie se trouve dans la zone de bordure.

Dans le premier secteur, on distingue quatre gisements exploités d'uranium et désignés par Boyindzi, Mounana, Oklo et Okélobondo (Gauthier-Lafaye, 1986):

- Le gisement de Boyindzi : situé dans un secteur où la bordure orientale de la boutonnière de socle prend une direction NW-SE dans une position parallèle à la direction tectonique du bassin. Sa production en uranium est estimée à 3100 tonnes ;
- Le gisement de Mounana : est le premier gisement qui a été découverte en 1956 et qui a constitué une étape importante dans la prospection de l'uranium en Afrique. Sa production en uranium est estimée à 5700 tonnes ;
- Le gisement d'Oklo : a été découvert en 1958 suite à des recherches par sondage. Il se trouve dans la région du Haut-Ogooué au Sud-Est du Gabon à 1.5 km du centre d'extraction du minerai d'uranium de Mounana. Sa production en uranium est environ 17300 tonnes ;
- Le gisement Okélobondo : a été découvert plusieurs années après celui d'Oklo. Il s'agissait de la limite sud du gisement qui rejoignait celui d'Oklo vers le nord. Ces deux gisements, Oklo et Okélobondo, constituent les plus importantes zones d'exploitation uranifère du Franceville.

Seul le gisement d'Oklo présente des zones de réactions. Le deuxième secteur se trouve dans la région de Moanda et contient un seul gisement nommé Bangombé. Dans ce gisement, il y a seulement une zone de réaction. Le troisième secteur se situe à proximité de la ville de Franceville, qui comprend le gisement de Mikouloungou et ne contient pas de zone de réaction (Fig.2).

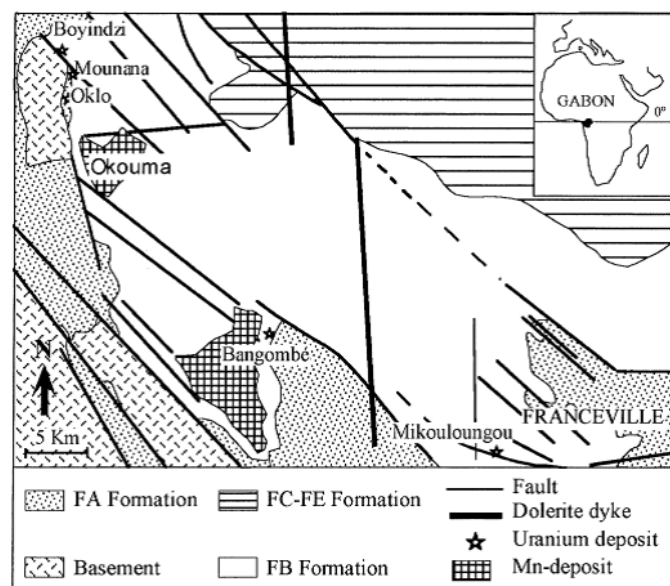


Figure 1.2 Carte géologique des gisements d'uranium à Oklo

### 2.3. Stratigraphie du bassin de Franceville

De point de vue stratigraphique, le bassin de Franceville est subdivisé en cinq niveaux principaux qui sont nommés de la base vers le sommet FA, FB, FC, FD et FE (*Gauthier-Lafaye et al, 1996 ; Gauthier-Lafaye and Weber, 2003*). Chacune de ces formations est bien définie avec ses principaux caractères (Fig.3).

- La formation FA : repose en discordance sur le socle métamorphique archéen à une épaisseur d'environ 1000 m. C'est une formation essentiellement grésoconglomératique dont la base est formée d'un conglomérat lenticulaire avec des galets du quartz et la partie supérieure est formée de grès fins alternant avec des niveaux pelitiques ;
- La formation FB : c'est une formation grésopélitique qui possède un caractère franchement marin avec une épaisseur comprise entre 400 m et 1000 m. Les matériaux constituant cette formation sont des argilites, des siltites gréseuses, des brèches, des dolomies et de niveau riche en fer. La formation FB est subdivisée en deux niveaux à la base FB1 et au sommet FB2. Le niveau FB1 est formé d'argilites noires bitumineux et de siltites riche en matière organique alors que le niveau FB2 est caractérisé par des dépôts gréseux avec des alternances de siltites et de black shales ;
- La formation FC : c'est une formation à caractère volcano-sédimentaire qui est généralement peu épaisse (<50cm). Elle est composée de jaspes et dolomies en proportion variable ;
- La formation FD et FE : sont aussi des formations composées de dépôts volcano-sédimentaires formés par une succession de black shales et de grès silteux dans la formation FD. La formation FE est constituée de grès alternants avec des pélites et des ampélites silteuses.

L'essentiel de la minéralisation uranifère se trouve dans la formation FA, particulièrement dans une structure géologique sédimentaire appelée « couche C1 ». Son épaisseur varie entre 3 à 8 m. Du point du vue stratigraphique, on peut distinguer, de la base vers le sommet de la couche C1, plusieurs séquences qui débutent par un conglomérat et se poursuivent par des grès à granulométries décroissantes. La couche C1 repose sur un conglomérat silicifié appelé « conglomérat du mur » épais de 5 à 20 cm et limité au toit par « les pélites du toit » qui forme la base de la formation FB (*Gauthier-Lafaye, 1986*).

Dans le gisement d'Oklo la couche C1 est subdivisée en dix unités qui sont regroupées en trois ensembles appelés l'ensemble de grès fins du mur, l'ensemble des grès moyens de base et l'ensemble des conglomérats et grès grossiers supérieurs. A Okélobondo, la couche C1 est subdivisée en cinq ensembles, le conglomérat du mur C1, les grès fins du mur, les grès de C1, les grès fins du toit et les grès supérieurs.

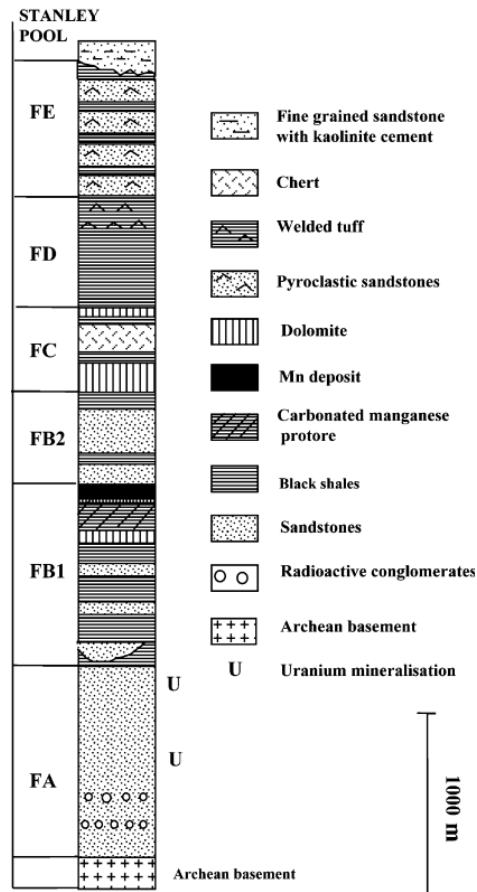


Figure 1.3 Stratigraphie du bassin de Franceville

### 3. Les zones de réaction nucléaire

Dans les gisements d'uranium cités auparavant, seuls les gisements d'Oklo et de Bangombé contiennent des zones de réaction qui sont au total de 16 zones de réactions : 15 zones dans le gisement d'Oklo et une zone dans le gisement de Bangombé située à 30 km au sud d'Oklo (*Gauthier-Lafaye, 2002*).

Les premiers réacteurs ont été découverts entre 1972 et 1974 dans le secteur nord du gisement d'Oklo qui ont été numérotés de 1 à 6 selon l'ordre chronologique de leurs découvertes. Pendant ces deux années, ces réacteurs nucléaires ont été étudiés bien en détail en

précisant leurs formes et géométries et en étudiant leurs contextes sédimentologie, stratigraphique et tectonique (*Gauthier-Lafaye et al, 1996*).

En 1978, trois nouvelles zones de réaction ont été découvertes dans la partie sud du gisement et numérotées 7, 8 et 9 (*Gauthier-Lafaye et al, 1996*). Ces réacteurs diffèrent de manière significative des zones de la partie nord du gisement et présentent des particularités intéressantes qui sont la présence de grande quantité de matière organique, la faible teneur en uranium et le faible taux d'appauvrissement. Malgré ces différences importantes, les réacteurs 7 à 9 n'ont pas été étudiés avec autant de détails que les réacteurs 1 à 6 dans les travaux de R. Naudet (*Naudet, 1991*). Plus récemment, une approche probabiliste basée sur l'application du code MCNP a été utilisée et réalisée pour la zone 9 et a conduit pour la première fois à la compréhension des conditions de démarrage de cette zone (*Bentridi, 2011a, 2011b*).

En 1982, d'autres zones de réactions ont été découvertes : cinq zones dans l'extrémité sud du gisement d'Oklo (10-13-16-15-OK84) et une zone dans le gisement de Bangombé. Le réacteur OK84 est situé dans le gisement d'Okélobondo qui correspond à l'extrémité sud du gisement d'Oklo.

Chaque zone de réaction dans le gisement d'Oklo se présente sous la forme d'un amas compact de minerai riche en uranium. Ces amas ont une gangue argileuse encaissée dans des argiles. On ne rencontre ces argiles que dans les zones de réactions. La gangue contient comme minéraux principaux l'illite et le chlorite qui aboutit à caractériser « un faciès piles » typique des zones de réaction. C'est dans ce faciès piles que les réactions de fission nucléaires ont eu lieu et où la teneur en uranium dépasse 20% et peut aller jusqu'à 60%. Dans l'environnement des zones de réactions on trouve l'argile de pile qui emballent le faciès piles. Il est spécifique aux réacteurs et n'a jamais été trouvé ailleurs dans le bassin de Franceville. Ces argiles proviennent d'une altération hydrothermale des grès encaissant les réacteurs. Dans le faciès piles l'uranium se trouve sous la forme de nodules d'uraninite bien cristallisés. Ce dernier constitue ce qu'on appelle le cœur du réacteur (*Gauthier-Lafaye, 1986*).

### **3.1. La position structurale des zones de réaction d'Oklo**

Les zones de réactions d'Oklo se répartissent en deux groupes (*Ruffenach, 1979*). Le premier groupe contient les réacteurs du secteur nord (zones 1 à 6) qui se situent sur le pourtour du « dôme ». Ces zones de réaction occupent une surface globale proche de 4000 m<sup>2</sup> qui représente 1.5% de la surface totale du gisement. Le deuxième groupe contient les réacteurs du secteur sud (zones 7, 8 et 9) qui se trouvent à 200 m du premier groupe dans une structure

tectonique identique à celle des zones du secteur nord mais avec des ampleurs différentes. Ces zones occupent une largeur d'environ 30 m, beaucoup moins que celle des zones 1 à 6 qui peuvent atteindre jusqu'à 120 m de largeur ; ce qui signifie que les zones du premier groupe sont les plus volumineux. Le plus grand réacteur est le réacteur de la zone 2. Il a 12 m de longueur, 18 m de largeur et une épaisseur de 20 à 50 cm et peut atteindre 1 m (*Gauthier-Lafaye, 2002*). Le réacteur de la zone 9 s'étend sur une longueur de 7 m et une largeur de 12 m avec une épaisseur de quelques centimètres uniquement (*Loss et al, 1988*).

### 3.2. Principaux paramètres des zones de réaction

Afin de caractériser les réactions nucléaires liées au phénomène d'Oklo, plusieurs analyses géochimiques, chimiques et isotopiques ont été effectuées sur plusieurs échantillons du minerai d'Oklo (*Ruffenach et al, 1975*). Elles ont conduit à la compréhension du phénomène d'Oklo et à la détermination des principaux paramètres liés au fonctionnement des différents réacteurs.

En allant du sud vers le nord, les accumulations en uranium augmentent. Elles sont maximales au nord surtout dans les zones 1 et 2 où la teneur en uranium dépasse 40 % alors que dans les zones 7 à 9 la teneur est presque 30 %.

Les quantités d'uranium ayant participé aux réactions de fission nucléaire diffèrent suivant les accumulations d'uranium dans les zones de réactions. Elles sont importantes dans les zones 1 et 2 où le taux de réaction est le plus élevé. Pour chacun de ces réacteurs, environ 1800 kg d' $^{235}\text{U}$  ont subis la réaction de fission nucléaire. A titre de comparaison, uniquement 480 kg d' $^{235}\text{U}$  ont fissionné dans les réacteurs 7 à 9. Au total près de 800 tonnes d'uranium ont participé aux réactions de fission nucléaires ce qui revient à dire qu'environ 6 tonnes d' $^{235}\text{U}$  a subi une fission nucléaire. Cela conduit à un taux d'appauvrissement maximal dans la zone 1 et 2 où la teneur en  $^{235}\text{U}$  peut atteindre une valeur inférieure à 0.5 % au lieu de 0.72% dans l'uranium naturel, alors que dans les zones 7 à 9 la teneur en  $^{235}\text{U}$  dépasse 0.6 % ; elle est comprise entre 0.6 et 0.65 %. Notons que l'uranium naturel s'appauvrit plus vite en isotopes 235 au cours du temps parce que la demi-vie de l'isotope  $^{235}\text{U}$  est plus petite que la demi-vie de l'isotope  $^{238}\text{U}$ . Pour la fluence, elle dépasse la valeur de  $10^{21} \text{ n/cm}^2$  dans la zone de réaction n°2 et se situe entre  $0.2$  et  $0.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$  dans les zones situées au sud du gisement (*Naudet, 1991; Gauthier-Lafaye et al, 1996; Gauthier-Lafaye, 2002 ; Loss et al, 1988*).

La participation de l'isotope  $^{238}\text{U}$  et de  $^{239}\text{Pu}$  aux réactions de fission peut être déterminée à partir des analyses des gaz rares de fission comme le *Kr* et *Xe*. L'analyse du palladium permet

de préciser la participation du  $^{239}\text{Pu}$  aux réactions de fission nucléaires. A partir de ces analyses, la contribution du plutonium-239 aux réactions de fissions dans la zone 2 a été faible et est de l'ordre de quelques pour cent. De plus, la conversion du plutonium en uranium a été importante parce qu'elle a contribué à la régénération de presque de la moitié de l'uranium-235 consommé.

La température est l'un des paramètres qui nous permet de comprendre le fonctionnement des réacteurs naturels. Elle a été estimée en se basant sur la variation des sections efficaces de capture neutronique en fonction de la température de certains produits de fission telle que le Lutétium. Cet élément a été utilisé comme indicateur de température grâce à sa grande sensibilité de la section efficace de capture neutronique aux variations des températures neutroniques (*Ruffenach, 1979*).

La datation des réactions nucléaires peut être déterminée à partir de deux méthodes. La première méthode est basée sur la mesure du nombre de fission de l'uranium 235 à partir de la relation suivante :

$$t = \frac{1}{\lambda_5} \ln \left( A \cdot \frac{N_{f5}}{U} \cdot \frac{1}{\tau} \right) \quad (\text{Eq.1.1})$$

On remarque que cette relation relie la date de réaction « t » à la fluence «  $\tau$  » et au nombre de fission de l'uranium 235 rapporté à l'uranium actuel  $\left( \frac{N_{f5}}{U} \right)$ . « A » est une expression numérique caractéristique de l'échantillon et  $\lambda_5$  c'est la constante radioactive de  $^{235}\text{U}$ .

La deuxième méthode est basée sur l'analyse du plomb et la mesure du rapport isotopique  $\frac{^{206}\text{Pb}}{^{207}\text{Pb}}$  en utilisant la relation :

$$\frac{N(^{206}\text{Pb})}{N(^{207}\text{Pb})} = \frac{N(^{238}\text{U})}{N(^{235}\text{U})} \times \frac{e^{\lambda_8 t} - 1}{e^{\lambda_5 t} - 1} \quad (\text{Eq.1.2})$$

dans laquelle le nombre d'atome des isotopes  $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  dans un échantillon de minerai sont données par ces deux relations suivantes :

$$\begin{aligned} N(^{206}\text{Pb}) &= N(^{238}\text{U})(e^{\lambda_8 t} - 1) \\ N(^{207}\text{Pb}) &= N(^{235}\text{U})(e^{\lambda_5 t} - 1) \end{aligned} \quad (\text{Eq.1.3})$$

$\lambda_8$  et  $\lambda_5$  sont les constantes radioactives des deux isotopes  $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$  respectivement et « t » est la date des réactions nucléaires. Notons que cette relation est appliquée sur un échantillon de minerai d'Oklo en considérant ce dernier comme un système fermé (*Ruffenach, 1979*).

Ces deux méthodes conduisent à des âges légèrement différents ;  $d = 2000 \pm 100 \text{MA}$  et  $d = 1730 \pm 10 \text{MA}$  respectivement.

Plusieurs études neutroniques ont été effectuées afin d'estimer la durée de fonctionnement des réacteurs naturels qui présente aussi un autre paramètre fondamental dans la compréhension du phénomène d'Oklo. Elle nous permet de comprendre les mécanismes de contrôles des réactions nucléaires.

La durée de la réaction a été estimée à partir de l'analyse isotopique de certains éléments présentant des quantités appréciables pendant la réaction nucléaire et qui ont une durée de demi-vie de l'ordre de  $10^5$  ans. Cette estimation est basée sur le Plutonium-239 et le Technétium-99, avec des demi-vies égales à 24 390 ans et 200 000 ans respectivement. Elle a conduit à une durée de fonctionnement de l'ordre de 600 000 ans et 800 000 ans dans la zone de réaction 2. Cette durée est variable d'un échantillon à un autre provenant de diverses zones de réaction. Elle est considérée comme la plus longue durée de fonctionnement dans la zone 2 qui peut aller jusqu'à un million d'années alors qu'elle est plus courte dans la zone 3 et 5 où les durées de fonctionnement sont de l'ordre d'une centaine de milliers d'années (*Gauthier-Lafaye, 1986; Hagemann et al, 1975* ).

Ce qui est certain, c'est que ces réactions nucléaires ont évolué de manière cyclique, en mode périodique et échelonné dans le temps sans aucune explosion (*Meshik et al, 2004*).

### **3.3. La zone de réaction n°9 (ZR9)**

Le réacteur n°9 (Fig.4) se situe dans la partie sud du gisement d'Oklo au milieu des deux réacteurs n°7 et 8 qui sont tous situés à 200 m plus en profondeur par rapport aux réacteurs situés dans la partie nord (1 à 6) (*Gauthier-Lafaye, 1986 ; 1996*). Il est caractérisé par un effondrement du toit et un renflement du mur à cause de l'argilisation des grès au centre de la zone de réaction qui conduit à une forme de lentille de quelques centimètres d'épaisseur s'étalant sur 7 m de longueur et 12 m de largeur. Ces déformations ont été produites sous l'effet des fluides chauffés par les réactions nucléaires circulant à travers les grès du mur de C1 par les réseaux de fractures et qui conduisent à la désilicification du conglomérat du mur. La disparition totale ou partielle du conglomérat du mur a pris des figures de ravinements. Ces



ravinements se situent dans les plans de fractures qui se prolongent dans la zone de réaction (ZR9).

La zone ZR9 se caractérise aussi par sa faible épaisseur du faciès pile allant de 5 cm à 15 cm et sa faible teneur en uranium qui dépasse rarement 35 %. L'argile de pile est aussi de faible épaisseur par rapport aux réacteurs 1 à 6. Elle se trouve se forme de lentille d'épaisseur discontinue (*Gauthier-Lafaye, 1986*)

La matière organique se trouve en quantité appréciable dans ce réacteur. Elle est riche en oxygène par rapport aux autres endroits qui se situent dans le même niveau stratigraphique dans lequel le rapport  $\frac{O}{C}$  est autour de 0,28. La présence de la matière organique avec ces quantités explique bien la concentration de l'uranium dans cette zone de réaction (*Naudet, 1991*).

La durée de fonctionnement de la ZR9 est d'environ  $2,2 \times 10^5$  ans. Au cours de cette période le flux neutronique a été calculé à environ  $3,6 \times 10^{20} n/cm^2$  et la densité de fission à  $0,92 \times 10^{20}$  fission/cm<sup>3</sup> avec une puissance de quelques centaines de Watts (*Loss et al., 1988*).

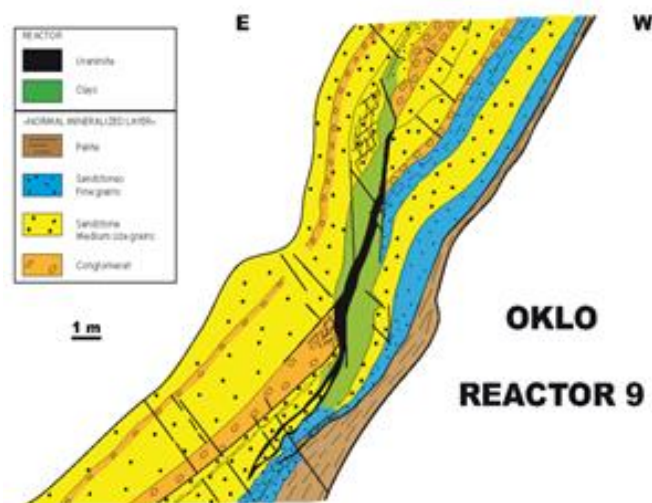


Figure 1.4 La zone de réaction n°9 à Oklo

#### 4. Les principaux événements survenus pendant le fonctionnement des réacteurs nucléaires naturels :

Dans ce qui suit, nous allons résumer les principales étapes géologiques et physiques qui ont conduit à la formation des zones de réactions ainsi que les conditions de déclenchement des réactions nucléaires et comment ces réacteurs ont pu fonctionner pendant des longues durées.

La première étape était la formation des fortes accumulations en uranium dues à l'augmentation significative de l'oxygène dans l'atmosphère, il y a deux milliards d'années, conduisant à la formation des gisements d'uranium dans le bassin sédimentaire de Franceville. Ces accumulations se trouvent principalement dans des couloirs de fracturations. Le déclenchement des réactions nucléaires est fait sous la présence des eaux souterraines ainsi que d'autres conditions de démarrage citées par R.Naudet et qui a montré que la criticité peut être atteinte dans un minerai riche en uranium sans faire intervenir des conditions draconiennes. Pendant le fonctionnement du réacteur la température s'est élevée ; ce qui a conduit à l'accélération du processus de dé-silicification du grès et a entraîné donc une augmentation de la teneur en uranium. Ces processus se déroulent dans le faciès pile qui présente le cœur du réacteur. De plus, l'augmentation de la température provoque l'évaporation de l'eau, ce qui ralentit la réaction et empêche un emballement du réacteur. Après la baisse de la température, l'eau afflue de nouveau et la réaction ré-augmente. Au voisinage du cœur, le grès environnant s'est transformé en gangue argileuse rendant compte du gradient de température depuis le cœur du réacteur vers ses épontes. La formation du faciès pile dans les roches avoisinantes permet la propagation des réactions nucléaires qui étaient importantes dans les zones du nord surtout les zones 1 et 2 puisque la durée des réactions était très longue par rapport au zones du sud permettant l'étendue de l'altération des roches encaissantes.

Au cours du temps la teneur en uranium 235 diminue et l'argilisation conduit à un colmatage de la porosité et donc à un départ de l'eau. La disparition de ces deux facteurs importants pour la poursuite du fonctionnement du réacteur conduit nécessairement à la suspension du réacteur nucléaire. Après l'arrêt des réactions, les circulations hydrothermales induites par les réactions de fission nucléaire se poursuivent pendant le temps de refroidissement.

### **5. La réaction de fission nucléaire**

Les réacteurs nucléaires naturels reposent sur la fission nucléaire de la même façon que dans les réacteurs industriels dans lesquels on récupère l'énergie produite par les réactions de fission pour produire de l'électricité. Cette énergie est de l'ordre du MeV par unité de masse ce qui explique bien son exploitation à l'échelle mondiale. Elle est basée sur un combustible peu favorisé par la nature, c'est l'uranium 235 qui ne représente actuellement que 0.72% de l'uranium naturel (*Ligou, 1997*).

L'exploitation de cet élément a commencé par les travaux d'Enrico Fermi et son équipe en 1934 juste après la découverte du neutron par le chercheur britannique James Chadwick dont le but

d'obtenir de nouveaux radioéléments en bombardant l'uranium par des neutrons. Après quatre ans de travaux et de recherches, Otto Hahn découvre en 1938 que l'uranium bombardé par les neutrons donne naissance à deux nouveaux noyaux légers. Ce phénomène a été interprété ensuite que les noyaux légers résultent de la division du noyau d'uranium en deux fragments lors de son bombardement par un neutron. Ces noyaux légers ont été appelés plus tard « produits de fission ».

### 5.1. Principe de la fission nucléaire

La fission nucléaire est un phénomène que se produit lors d'une réaction nucléaire entre un neutron et un noyau lourd (qui contient beaucoup de nucléons tel que l'uranium) qui conduit à la division de ce noyau lourd en deux noyaux plus légers avec émission de neutrons et un dégagement d'énergie très important (Fig.5) (Marguet, 2011). Ce phénomène ne concerne que certains éléments appelés noyaux fissiles et qui sont tous instables. Le seul noyau fissile naturel est l'uranium 235. Un autre noyau fissile, mais artificiel, est le plutonium 239 produit à partir de l' $^{235}\text{U}$  dans les réacteurs nucléaires et qui possède des propriétés voisines de celles de  $^{235}\text{U}$ .

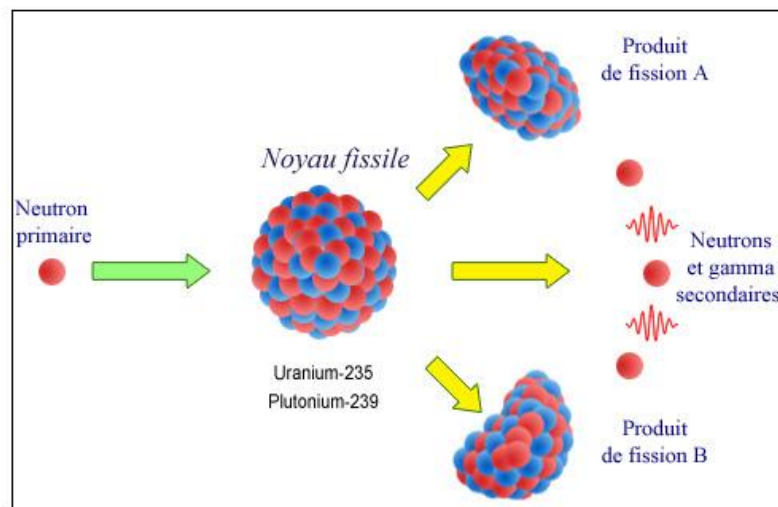


Figure 1.5 Réaction de fission nucléaire induite

La fission nucléaire peut être spontanée lorsque le noyau se désintègre en plusieurs fragments sans absorption d'une particule (généralement un neutron). Ce type de fission n'est possible que pour les noyaux extrêmement lourds, c'est un phénomène rare et exceptionnel. Le plus souvent, la fission induite est provoquée par l'absorption d'un neutron possédant une énergie suffisante pour briser le noyau. Par exemple, l' $^{235}\text{U}$  subit la fission induite par l'absorption d'un neutron thermique (énergie < 0.5 MeV) alors que l' $^{238}\text{U}$  ne fissionne que par un neutron rapide (énergie > 1 MeV).

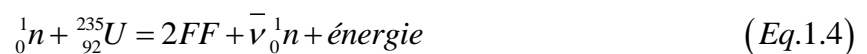
En effet, le neutron est une particule neutre qui a le pouvoir de s'approcher suffisamment près du noyau positif sans être repoussé par les forces électriques. Il peut pénétrer à l'intérieur du noyau lourd et le diviser en deux fragments légers éjectés avec une grande vitesse de l'ordre de  $10^9 \text{ cm/s}$  ce que veut dire une grande énergie cinétique qui présente environ 80% de l'énergie libérée par une fission nucléaire. Une partie de l'énergie est emportée par les neutrons produits par la fission (environ 3%). Le reste est dissipé sous forme de rayonnements.

L'énergie cinétique des produits de fission va finalement se transformer en chaleur. Dans un réacteur nucléaire cette chaleur sera récupérée pour produire de l'électricité.

Les fragments de fission vont à leur tour évoluer par décroissance radioactive  $\beta^-$  vers des noyaux plus stables. Pour les réacteurs d'Oklo, on ne retrouve actuellement que les produits situés en fins de la chaîne radioactive parce que ces réacteurs ont fonctionné il y a 2 milliard d'années.

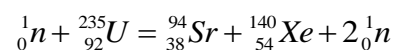
### 5.2. Les produits de fission

Un noyau lourd qui s'est fragmenté suite à la capture d'un neutron donne lieu à des produits de fission (PF). Chaque fission nucléaire conduit à deux fragments de fission ainsi que deux à trois neutrons de fission avec un dégagement d'énergie (*Marguet, 2011*).



#### 5.2.1. Les fragments de fission (FF)

Il existe de nombreuses possibilités de fragmentation et rarement un partage par moitié du noyau fissile initial est obtenu. La fragmentation donne lieu à deux noyaux de tailles inégales, comme par exemple :



Les probabilités de formation de divers fragments de fission pour tous les noyaux fissiles ont été déterminés expérimentalement en fonction de leurs masses atomiques (Fig.6). D'après cette figure on remarque qu'elle présente deux sommets (dos de chameau) centrés autour des masses atomiques 94 et 140. Les fissions les plus probables conduisent à des fragments de fission (FF) ayant ces nombres de masse atomique. Pour des nombres de masses inférieures à 75 et supérieur à 150 les rendements de fission sont presque négligeables.

Les fragments de fission continuent à être actifs, leur temps de retour à la stabilité est extrêmement variable selon leurs durées de vie. Il peut être de quelques jours pour un FF à 140 nucléons comme il peut être 210 000 ans pour un autre FF à 99 nucléons.

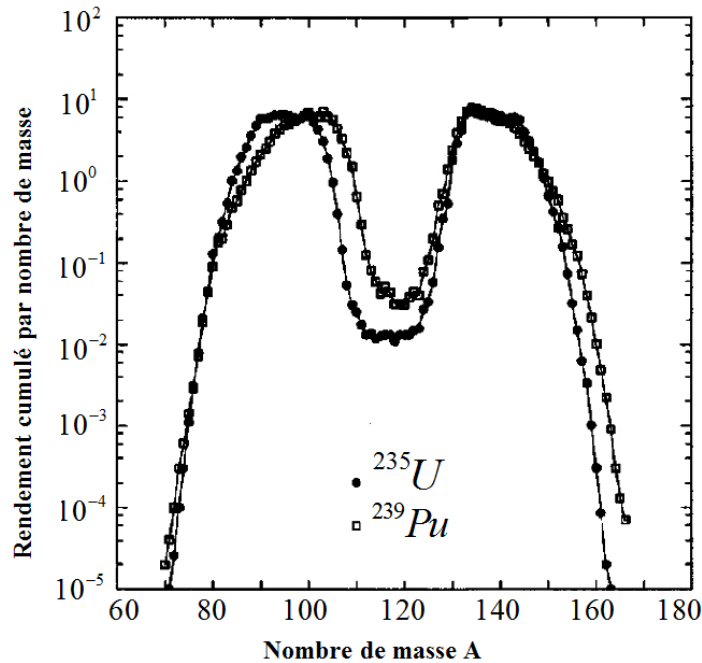
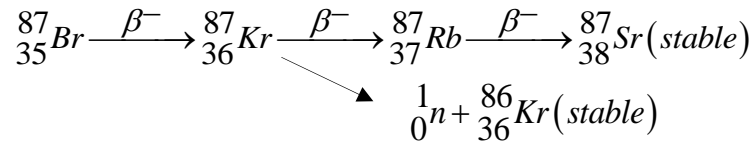


Figure 1.6 Distribution des produits de fission en fonction de leurs masses atomiques : comparaison de l'uranium-235 et le plutonium-239 (Reuss, 2003).

### 5.2.2. Les neutrons de fission

En moyenne  $\bar{\nu}$  neutrons sont créés par fission où  $\bar{\nu}$  est de l'ordre de 2.4 à 2.9 suivant la matière fissile. Il existe aussi un grand nombre de possibilités que les neutrons produits soient plus ou moins énergétiques, il en résulte un spectre d'énergie continue (Fig.7). Dans le cas de la fission de l'uranium 235 l'énergie d'émission la plus probable est de 0.75 MeV et l'énergie moyenne vaut 2 MeV.

Les neutrons issus de la fission sont regroupés en deux familles, les neutrons prompts et les neutrons retardés. Les neutrons émis instantanément lors de la fission sont appelés les neutrons prompts alors que les neutrons provenant en retard par rapport aux neutrons de fission (prompts) sont appelés neutrons retardés, ils sont émis par certains fragments de fission appelés précurseurs en même temps qu'ils subissent une décroissance bêta. L'énergie de séparation d'un neutron de ces précurseurs est faible devant leurs énergies d'excitation donc le noyau a la possibilité d'émettre un neutron retardé.



Les neutrons retardés sont peu nombreux par rapport aux neutrons prompts, leur fraction est exprimée en pour cent mille. Dans le cas de l'uranium 235, seul 0.66% de l'ensemble des neutrons naissant par fission apparaissent de manière retardée. Malgré que leur portion soit faible, elle suffit à modifier le comportement cinétique de la population neutronique. Ils ont un rôle fondamental dans le contrôle et le pilotage des réacteurs nucléaires. Plus le nombre de neutrons retardés est important, plus le réacteur serait facile à piloter. S'il n'y avait que des neutrons prompts le réacteur serait ingouvernable.

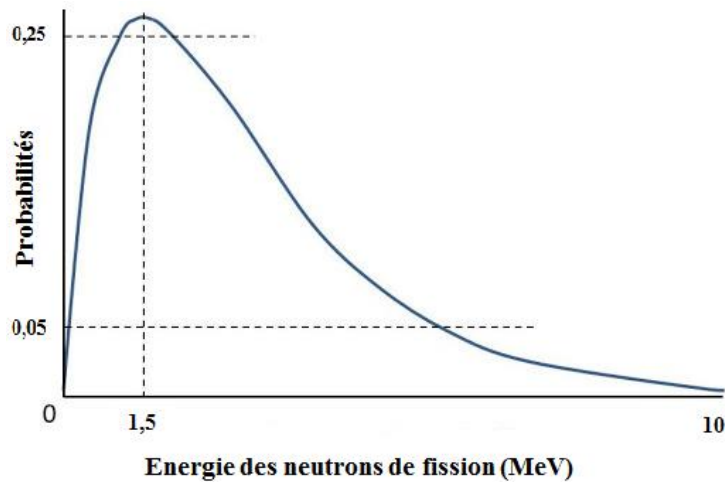


Figure 1.7 Spectre des neutrons de fission

o Classification des neutrons

Les neutrons émis par la fission subissent des chocs sur les noyaux du milieu et perdent progressivement leur énergie (ralentissement) jusqu'à atteindre l'équilibre thermodynamique. En fonction de leur énergie, on peut classer les neutrons depuis les neutrons thermiques jusqu'aux neutrons de plusieurs centaines de MeV.

- a) Neutrons thermiques : Ce sont des neutrons qui ont une énergie cinétique telle qu'à la température ambiante, ils se trouvent en équilibre thermodynamique avec les noyaux du milieu. Les énergies des neutrons thermiques suivent une distribution de Maxwell-Boltzmann comme dans le cas des molécules d'un gaz parfait.

$$N(E)dE = \frac{2\pi}{(\pi KT)^{\frac{3}{2}}} e^{-E/KT} \sqrt{E} dE \quad (\text{Blanc, 1990}) \quad (\text{Eq.1.5})$$

$T$  : La température absolue (Kelvin)

$K$  : La constante du Boltzmann

L'énergie la plus probable des neutrons thermiques à  $T = 300K^\circ$  vaut  $E_0 = 0.0025eV$  à une vitesse  $v_0 = 2200m/s$ . On trouve dans le tableau 1.1 (Blanc, 1990) les valeurs de  $E_0$  et  $v_0$  pour les neutrons thermiques à différentes valeurs de  $T$ . La limite supérieure de l'énergie au-dessous de laquelle les neutrons sont considérés comme des neutrons thermiques est la valeur 0.5 eV.

$T(K^\circ)$	$E_0(eV)$	$v_0(m/s)$
300	0.0025	2200
400	0.0340	2600
600	0.0520	3100
800	0.0690	3600

Tableau 1.1 Valeurs de  $E_0$  et  $v_0$  pour des neutrons thermiques à la température  $T$

- a) Neutrons épi-thermiques : Ce sont les neutrons dont l'énergie cinétique est comprise entre 0.5 eV et 200 keV ;
- b) Neutrons rapides : Ce sont les neutrons qui ont une énergie supérieure à 200 keV. Ils sont appelés neutrons rapides pour les distinguer des neutrons thermiques de faible énergie et des neutrons à haute énergie produits par les gerbes cosmiques. Les neutrons rapides sont difficilement capturés par les noyaux, leur probabilité d'interaction est beaucoup plus faible que celle des neutrons thermiques. Ils peuvent être ralentis pour devenir thermiques via le processus de modération.

### 5.2.3. L'énergie de fission

La réaction de fission nucléaire dégage une quantité considérable d'énergie de l'ordre de 200 MeV par fission. C'est cette énergie qui est utilisée dans les réacteurs électronucléaires.

Elle correspond principalement à la différence de l'énergie de liaison du noyau lourd initial et les produits de fission. Cette énergie est libérée sous forme d'énergie cinétique des FF, des neutrons ainsi que les neutrinos qui emportent une petite partie de l'énergie de la réaction. L'énergie cinétique des FF est dissipée sous forme de chaleur alors que la décroissance

radioactive des produits de fission donne lieu à une énergie résiduelle libérée plus ou moins longtemps après.

La décomposition de l'énergie de fission induite de quelques noyaux lourds est partagée de la façon indiquée dans le tableau 1.2 (Marguet, 2011).

	$^{235}\text{U}$	$^{238}\text{U}$	$^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$
<b>Fragments de fission</b>	166.2	166.9	172.8	172.2
<b>Neutrons</b>	4.8	5.5	5.9	5.9
<b>Gammas prompts</b>	8.0	7.5	7.7	7.6
<b>Gammas des produits de fission</b>	7.2	8.4	6.1	7.4
<b>Betas des produits de fission</b>	7.0	8.9	6.1	7.4
<b>Neutrinos/antineutrinos</b>	9.6	11.9	8.6	10.2
<b>Energie totale libérée par fission</b>	202.7	205.9	207.2	210.6

Tableau 1.2 Bilan énergétique en MeV de la fission induite par des neutrons sur différents noyaux lourds

### 5.3. La réaction en chaîne

Le mécanisme de la fission nucléaire permet de créer in situ des neutrons qui vont induire de nouvelles réactions de fission, une réaction en chaîne est ainsi possible. Ce sont Frédéric Joliot, Hans Von Halban et Lew Kowarski qui imaginèrent en premiers que les neutrons créés par fission peuvent engendrer une réaction en chaîne.

Lorsque la population neutronique croît, dans le sens où les productions des neutrons est plus grande que leurs disparitions, on dit que la réaction est divergente. Pour entretenir la réaction en chaîne, il suffit qu'un seul neutron engendre une nouvelle fission parmi les  $\bar{n}$  neutrons émis. En réalité une partie des neutrons émis sont perdus soit par capture radiative soit par fuite en dehors du système. Dans un réacteur nucléaire de recherche ou industriel, la réaction en chaîne est contrôlée grâce à des dispositifs appropriés (barres de contrôle) de façon à maintenir constante la population des neutrons.

#### 5.3.1. Facteur de multiplication de la réaction en chaîne

Le comportement global de la réaction en chaîne est lié au facteur de multiplication  $k$  qui présente le rapport entre deux générations successives de neutrons de fissions. Pour un



réacteur infini sans fuites (cas idéal), le facteur de multiplication prend le nom de  $k$  infini ( $k_\infty$ ). Il est donné par « la formule des quatre facteurs » qui permet de décrire  $k_\infty$  en fonction de quatre grandeurs représentatives du combustible et qui sont le facteur de reproduction  $\eta$ , le facteur de fission rapide  $\varepsilon$ , le facteur antitrappe  $P$  et le facteur d'utilisation thermique  $f$  (Marguet, 2011). Elle s'écrit :

$$k_\infty = \eta \varepsilon p f \quad (Eq.1.6)$$

Généralement, les réacteurs sont de dimensions finies et il faut prendre en considération la possibilité des fuites des neutrons hors du système. Dans ce cas le facteur de multiplication prend le nom de  $k$  effectif et est donné par le produit de  $k$  infini fois la probabilité de non-fuite  $P$ . Il s'écrit sous la forme suivante (Marguet, 2011 ; Reuss, 2003) :

$$k_{eff} = k_\infty \cdot P \quad (Eq.1.7)$$

La réaction en chaîne n'est possible que si  $k_{eff} \geq 1$ . Si  $k_{eff} = 1$ , le réacteur est critique et la réaction en chaîne est auto-entretenu, si  $k_{eff} < 1$ , le réacteur est sous-critique et la réaction tend à s'éteindre. Pour  $k_{eff} > 1$ , la réaction en chaîne tend à s'emballer et le réacteur est dit sur-critique.

Il existe aussi une autre grandeur dérivée de  $k_{eff}$  appelée « réactivité » et qu'on calcule par la formule (Eq.1.8), elle exprime la déviation par rapport à l'état critique. Sa valeur est très inférieur à 1 et on la quantifie, souvent, en pour cent mille (pcm).

$$\rho = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}} \quad (Eq.1.8)$$

### 5.4. Sections efficaces

Les neutrons présents dans un réacteur nucléaire n'induisent pas seulement des fissions mais aussi d'autres phénomènes neutroniques plus ou moins probables. L'ensemble des probabilités d'interactions des neutrons avec les différents noyaux du milieu présente une donnée fondamentale des phénomènes neutroniques. Les sections efficaces sont les grandeurs caractéristiques de ces probabilités. La section efficace microscopique  $\sigma$  d'un noyau caractérise la probabilité qu'a un neutron d'interagir avec celui-ci. Elle est exprimée en  $cm^2$  ou plus généralement en barn ( $1barn = 10^{-24} cm^2$ ). Elle est dite microscopique lorsqu'elle est caractéristique du noyau cible individuel, Lorsque la section efficace microscopique est

multipliée par le nombre de noyaux par unité de volume, la section efficace se transforme en section efficace macroscopique ( $\Sigma = n \times \sigma$ ).

### 5.4.1. Types d'interaction des neutrons avec la matière

Puisque le neutron est une particule neutre, il ne subit pas d'interactions coulombiennes. Lors de l'interaction du neutron avec le noyau, on peut distinguer les interactions qui ne font pas disparaître le neutron et qu'on appelle diffusion de celles qui le font disparaître et qu'on appelle absorption. Parmi ces dernières, certaines induisent des réactions de fission, d'autres des réactions de capture qui regroupe les réactions de capture radiative et les réactions inélastiques du type  $(n, nx)$ ,  $(n, \alpha)$ ,  $(n, d)$ ,  $(n, p)$  etc. (Reuss, 2003, 2008).

Interaction sans formation d'un noyau composé			Notation usuelle du type de la réaction
Diffusion potentielle (élastique)	$n + {}^A_Z X \rightarrow n + {}^A_Z X$	Toujours possible	$(n, n)$
Interaction passant par la formation d'un noyau composé			
Diffusion résonnante élastique	$n + {}^A_Z X \rightarrow n + {}^A_Z X$	Toujours possible	$(n, n)$
Diffusion résonnante inélastique	$n + {}^A_Z X \rightarrow n' + {}^A_Z X^*$ ${}^A_Z X^* \rightarrow \gamma + {}^A_Z X$	Seuil : premier niveau d'énergie de ${}^A_Z X$	$(n, n')$
Diffusion $(n, 2n)$	$n + {}^A_Z X \rightarrow n_1 + n_2 + {}^{A-1}_Z X$	Seuil : énergie de séparation d'un neutron de ${}^A_Z X$	$(n, 2n)$
Capture radiative	$n + {}^A_Z X \rightarrow \gamma + {}^{A+1}_Z X$	Toujours possible	$(n, \gamma)$
Capture donnant une particule chargée légère	$n + {}^A_Z X \rightarrow p + {}^{A-1}_{Z-1} Y$ $n + {}^A_Z X \rightarrow \alpha + {}^{A-3}_{Z-2} Y$	Généralement à seuil ; parfois sans seuil	$(n, p)$ $(n, \alpha)$
fission	$n + {}^Z_Z X \rightarrow PF_1 + PF_2 + \nu n$	Sans seuil pour les noyaux lourds impairs en neutrons ; sinon (hormis l'effet tunnel)	$(n, f)$

Tableau 1.3 les différentes interactions entre les neutrons et les noyaux

Donc, Pour chaque noyau, on peut définir la section efficace d'absorption ( $\sigma_a$ ) et la section efficace de diffusion ( $\sigma_s$ ), La section efficace totale ( $\sigma_T$ ) est donnée par :  $\sigma_T = \sigma_a + \sigma_s$  ou` la section efficace d'absorption est la somme des sections efficace de fission et de capture ( $\sigma_a = \sigma_f + \sigma_c$ )(*Reuss, 2008*).

#### 5.4.2. Allure des sections efficace neutroniques

Les sections efficaces neutroniques diffèrent de façon importante avec l'énergie des neutrons incidents ainsi que le type du noyau et le type d'interaction qu'il s'agisse de diffusion ou d'absorption. Les sections efficaces sont plus grandes pour la plupart des matériaux à basses énergies généralement inférieures à quelques centaines d'eV. Elles peuvent devenir très grandes, lorsque l'énergie du neutron incident conférée au noyau composé est proche de l'énergie de l'un de ses niveaux d'excitation. Cela se traduit par une brusque remontée de la section efficace d'interaction entre le neutron et le noyau au voisinage de ces énergies (Fig. 1.8). On dit alors que, pour ces énergies, le noyau présente des résonances. Ces résonances sont bien séparées en énergie à basse énergie d'excitation (domaine des résonances résolues). Leur espacement diminue quand l'énergie d'excitation augmente (domaine des résonances non résolues) jusqu'à s'annuler (domaine du continuum). En l'absence des résonances dans le domaine des énergies faibles (neutrons thermiques), la section efficace d'absorption est plus grande lorsque les neutrons sont moins rapides, elle est inversement proportionnelle à la vitesse du neutron incident ou à la racine carré de son énergie : c'est la loi de variation en  $\frac{1}{v}$  suivi par la plupart des sections efficaces d'absorption. Pour la diffusion, les sections efficaces ne varient pas beaucoup en fonction de l'énergie du neutron et gardent le même ordre de grandeur (1 à 10 barns) pour l'ensemble des noyaux sauf l'Hydrogène léger ( $^1H$ ) qui présente la plus grande section efficace de diffusion (20 barns). Elles ont tendance à diminuer pour les énergies supérieures à quelques MeV.

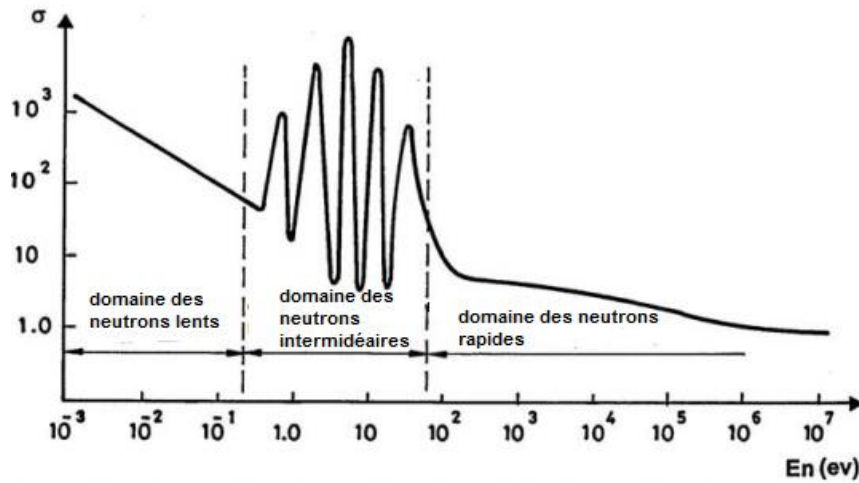


Figure 1.8 Section efficace d'absorption neutronique en fonction de l'énergie

A titre d'exemple la figure 1.9 (*JEFF-3.1*) représente les variations de la section efficace de la réaction  $(n, \alpha)$  sur le Bore 10 qui présente un excellent absorbant neutronique. La figure présente bien une section efficace qui suit presque parfaitement la loi en  $1/v$ .

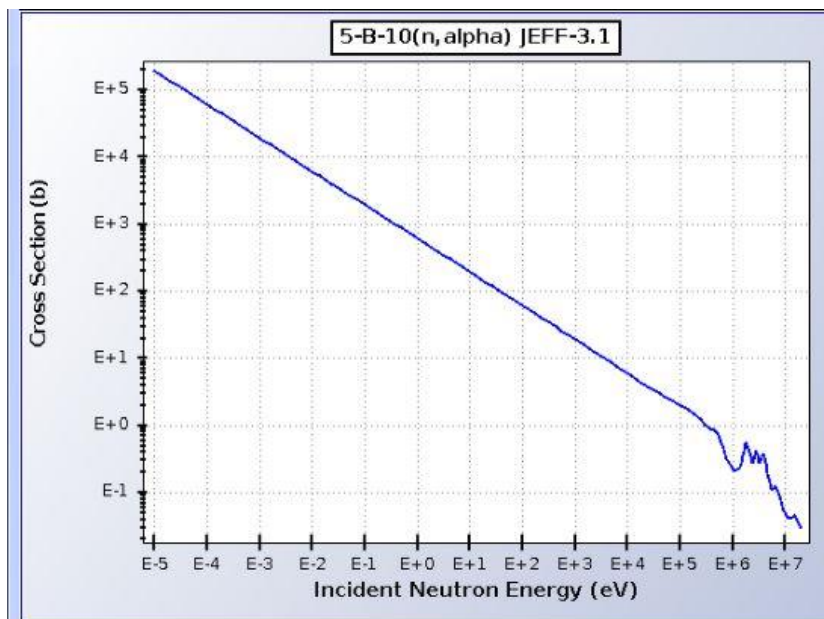


Figure 1.9 Section efficace de la réaction  $(n, \alpha)$  sur le Bore 10

Dans un réacteur nucléaire la réaction la plus importante est celle de la fission sur l'uranium 235 qui joue un rôle fondamental dans la production de l'énergie. Les variations de la section efficace de la fission de l' $^{235}\text{U}$  en fonction de l'énergie des neutrons incidents sont représentées dans la figure 1.10. On voit une dépendance en  $1/v$  de la section efficace pour les neutrons incidents ayant une énergie inférieure à 0.1 eV (neutrons thermiques). Les sections efficaces les plus grandes sont obtenues pour des neutrons d'énergie très faible. Dans la gamme

des neutrons épi-thermiques, des raies de résonances sont présentes, dans ce cas, les variations de la section efficace deviennent très grandes et très rapides. Dans la gamme des neutrons rapides la section efficace est faible, elle devient presque constante et varie lentement. Il existe aussi une autre réaction qui concurrence la fission c'est la capture radiative. Pour l' $^{235}\text{U}$  dans la gamme des neutrons thermiques, la capture radiative ne concerne que 10 à 28 % des captures. Au contraire, pour l' $^{238}\text{U}$ , dans la même gamme d'énergie, la capture radiative est le phénomène unique (Fig.1.11). Dans un réacteur nucléaire, la capture de neutron par ce noyau conduit à la formation de plutonium-239 qui est lui-même fissile.

La figure 1.12 nous donne une comparaison entre les sections efficaces de fission des deux isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ . Pour les neutrons thermiques, c'est la section efficace de fission de l' $^{235}\text{U}$  qui domine. Dans la gamme des hautes énergies la section efficace de fission de l' $^{238}\text{U}$  devient grande et prend le dessus de celle de l' $^{235}\text{U}$ . Les sections efficaces nous permettent d'expliquer pourquoi l' $^{235}\text{U}$  est le plus favorable pour une réaction en chaîne. A basse énergie sa section efficace est 100 millions fois plus élevée que celle de l' $^{238}\text{U}$  qui a une section efficace de fission beaucoup trop faible à cette énergie. De plus, la réaction en chaîne nécessite que l'un au moins des neutrons prompts issus de la fission génère une autre fission alors que dans le cas de l' $^{238}\text{U}$  et pour les énergies en dessous du MeV, un neutron sur 100 000 produit une fission. En fait l'utilisation de l'uranium 238 dans la gamme des neutrons rapides nécessite une quantité d'uranium plus importante que celle utilisée dans un réacteur à  $^{235}\text{U}$  avec des neutrons thermiques.

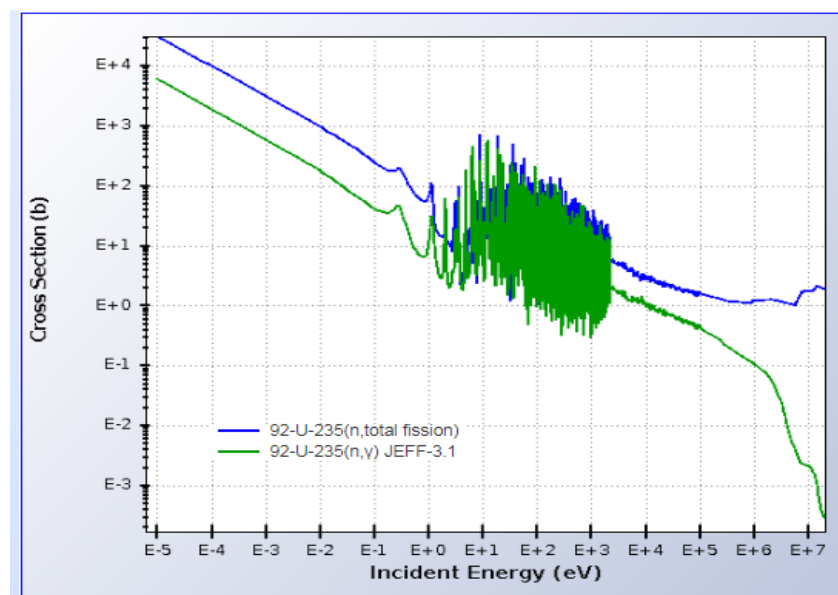


Figure 1.10 Section efficace de capture et de fission sur l'uranium 235

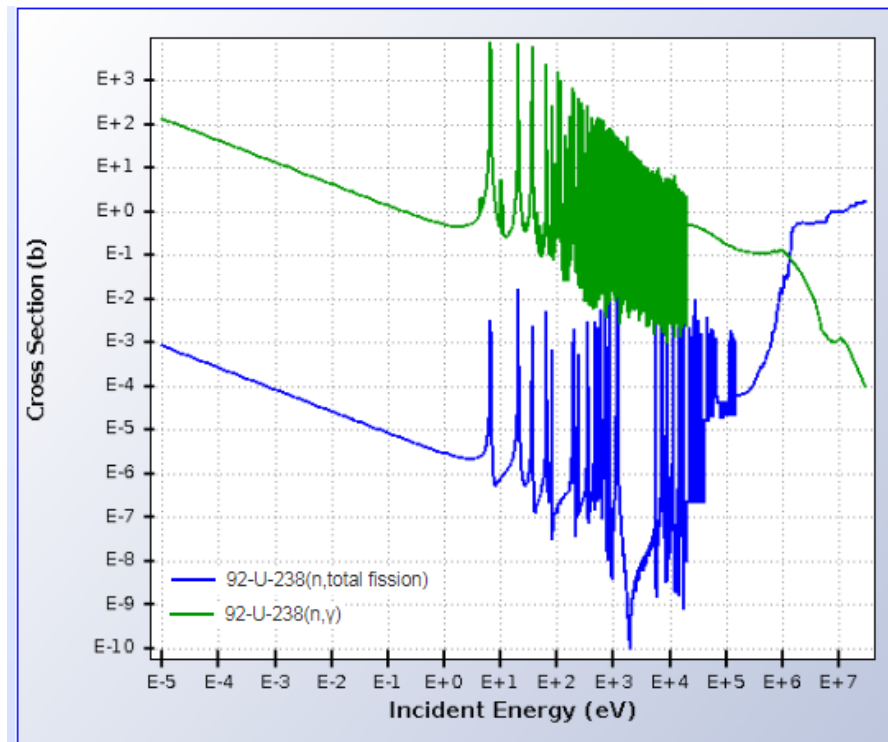


Figure 1.11 Section efficace de capture et de fission sur l'uranium 238

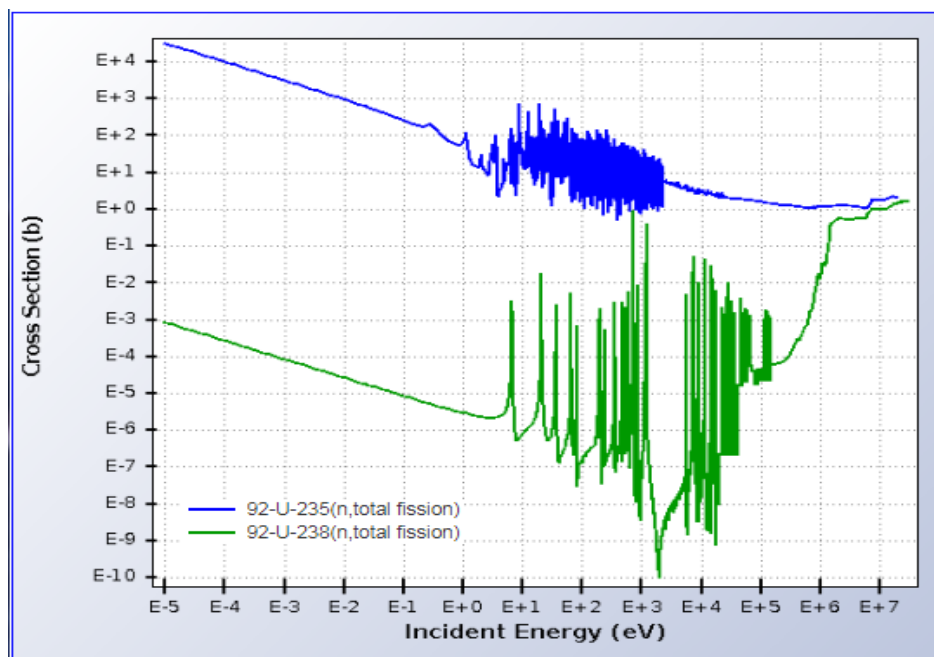


Figure 1.12 Section efficace de fission de l'  $^{235}\text{U}$  et l'  $^{238}\text{U}$

### 5.5. Comparaison entre un réacteur industriel et un réacteur naturel d'Oklo

Le principe de fonctionnement d'une centrale nucléaire est commun à une centrale classique à fuel ou à gaz où une source de chaleur permet de vaporiser de l'eau afin de l'utiliser pour maintenir le mouvement des turbines reliées à un alternateur producteur d'électricité. La plupart

des réacteurs nucléaires industriels sont destinés à la production d'électricité. La particularité d'une centrale nucléaire est que son fonctionnement est basé sur la réaction de fission nucléaire en chaîne. Donc, un réacteur nucléaire est tout simplement un système qui permet de maîtriser cette réaction en chaîne afin de maintenir un rythme de fission constant. La quantité de chaleur libérée est ainsi contrôlée.

L'état global d'un réacteur nucléaire est défini par le facteur de multiplication effectif  $k_{eff}$  ainsi que la réactivité qui permet de contrôler le réacteur. Le contrôle est effectué par la modification de la valeur de  $k_{eff}$  autour de 1 : augmenter la puissance du réacteur revient à le conduire vers un état sur-critique et l'arrêter revient à le diriger vers un régime sous-critique.

Quelle que soit la filière à laquelle les réacteurs appartiennent, ils ont tous en commun quatre constituants principaux qui sont : le combustible, le modérateur, les barres de contrôles et le caloporteur.

- Le combustible : contient la matière fissile ainsi que la matière fertile qui, sous l'action des neutrons, se transforme partiellement en matière fissile. La matière fissile la plus utilisée est l'uranium-235 comprimé en pastilles et inséré dans des crayons combustibles. Ces derniers sont ensuite réunis en faisceaux dans des assemblages de combustible placés dans le cœur du réacteur ;
- Les barres de contrôle : la modification de la valeur de  $k_{eff}$  est faite par l'intermédiaire des barres de contrôle qui permettent de réguler la population neutronique. Elles sont constituées de matériaux absorbants qui capturent les neutrons. Ces barres sont mobiles dans le cœur du réacteur, elles peuvent être descendues ou remontées selon le nombre de neutrons à absorber ;
- Le modérateur : La plupart des réacteurs (réacteur à neutrons thermiques) comportent ce que l'on appelle un modérateur. Son rôle est de ralentir les neutrons libérés lors de la fission nucléaire qui sont trop énergétiques pour provoquer efficacement une nouvelle fission. Il est constitué de matériau essentiellement diffuseur et peu absorbant des neutrons tel que l'hydrogène qui constitue l'élément modérateur le plus efficace en plus d'être abondant. Dans les réacteurs à neutrons rapides le modérateur est absent ;
- Le caloporteur : L'énergie libérée sous forme de chaleur lors des réactions de fission doit être transportée hors du cœur du réacteur, vers les systèmes qui transforment cette chaleur en électricité. Ce rôle est assuré par le caloporteur qui peut être de l'eau, un

métal liquide ou un gaz. Il permet de maintenir la température du combustible à sa valeur nominale.

A la base du choix de ces composants et le domaine d'application, il existe plusieurs filières de réacteurs nucléaires. Du point de vue physique, on peut classer les réacteurs nucléaires en deux grandes familles : les réacteurs à neutrons rapides qui sont toujours à l'étude et n'ont pas encore atteint l'étape du développement commercial, et les réacteurs à neutrons thermiques qui ont été largement développés. Ces derniers diffèrent par le choix de deux critères qui sont le modérateur (graphite, eau : légère ou lourde) et le fluide caloporteur (un gaz ou un liquide). La combinaison entre ces deux critères donne lieu à plusieurs types de réacteurs à neutrons thermiques, on cite les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) qui sont les plus utilisés dans le monde et les plus proches du phénomène d'Oklo.

La principale caractéristique des réacteurs à eau sous pression est l'utilisation de l'eau légère à la fois comme modérateur et fluide caloporteur dans le circuit primaire. Sa température au contact de la gaine du combustible est d'environ 300°C. Pour éviter l'ébullition de l'eau du circuit primaire dans le cœur, elle est maintenue liquide sous l'effet d'une pression de l'ordre de 150 atmosphères à l'aide d'un pressuriseur. Le combustible utilisé est de dioxyde d'uranium faiblement enrichi (3.5% en  $^{235}\text{U}$ ). Le réacteur doit avoir des réflecteurs pour limiter les fuites de neutrons, les réflecteurs doivent être des matériaux diffuseurs pour que les neutrons retournent éventuellement vers le cœur. L'eau légère constitue un bon réflecteur radial pour les réacteurs REP.

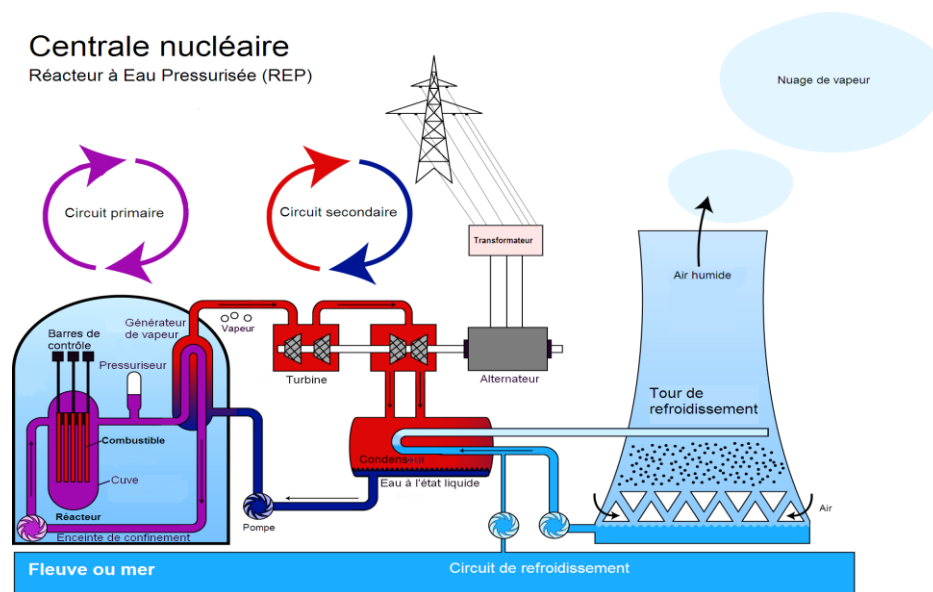


Figure 1.13 Schéma de fonctionnement d'une centrale nucléaire de type REP



En comparant les réacteurs naturels d'Oklo et les réacteurs REP on trouve qu'il y a une analogie entre les deux. D'un côté, l'enrichissement des REP est très voisin de celui d'Oklo il y a deux milliard d'années. On remonte dans le temps, l'abondance relative de l'uranium-235 était proche de 17% à la création du système solaire, et 3.5% il y a deux milliard d'années qui correspond à l'âge estimé du gisement d'Oklo et la mise en place des zones de réactions naturelles. D'un autre côté, les zones de réactions ont été enfouies à une profondeur de 2 à 5 km sous leurs sédiments. A cette profondeur les conditions de pression et de température étaient proches de celles utilisées dans les réacteurs REP. La température et la pression étaient d'environ 150 °C et 200 bar respectivement, et l'eau à Oklo reste liquide sous l'effet de ces conditions.

Concernant le contrôle des réacteurs naturels, il n'y a pas l'équivalent des barres de contrôles mais il y a un autre mécanisme principal basé sur la température qui permet le contrôle. L'eau souterraine qui coule à travers la zone du réacteur modère les neutrons et permet le démarrage de la réaction en chaîne de l'uranium-235. Avec le dégagement de l'énergie de fission, la température du réacteur s'élève et après un laps de temps, l'eau souterraine commence à bouillir et son pouvoir modérateur diminue. Ceci implique une diminution du nombre de fission et une augmentation des réactions de captures sans fission par l'uranium-238, ce qui conduit à l'arrêt du fonctionnement du réacteur. Lorsque la température baisse et redevient à la normale, l'eau souterraine retourne dans les zones de réaction et le fonctionnement du réacteur recommence.

Puisque la durée de fonctionnement des réacteurs naturels était très longue, la régénération de l'uranium-235 par la contribution de l'uranium-238 n'était pas négligeable et était significative comparativement aux réacteurs REP dont la durée de fonctionnement est très courte par rapport à la durée de vie du plutonium-239. Rappelons que par activation neutronique sur l' $^{238}\text{U}$ , on génère le  $^{239}\text{Pu}$  qui par décroissance alpha régénère l' $^{235}\text{U}$ .

---

## **Chapitre 2 : Rappels de neutronique**

---

### 1. Introduction

La neutronique est une branche de la physique nucléaire dédiée à l'étude du cheminement des neutrons dans la matière et les réactions qu'ils y induisent. Elle permet d'établir un pont entre le monde microscopique et le monde macroscopique, et possède la particularité d'utiliser des données microscopiques, représentées par les interactions entre les neutrons et les noyaux atomiques, issues des calculs quantiques pour estimer des grandeurs macroscopiques comme la puissance d'un réacteur nucléaire par exemple (*Delclaux et al, 2013*).

La grandeur fondamentale que la neutronique cherche à déterminer est la population neutronique qui doit être connue de façon détaillée à tout instant et en tout point en permettant le contrôle et le suivi du milieu dans lequel ces neutrons évoluent (*bussac et Reuss, 1985*).

Dans un milieu multiplicateur de neutron, comme un réacteur par exemple, la population de neutrons atteint des valeurs très élevées, au-delà de la centaine de millions de neutrons libres par  $cm^3$ . Ceci présente un nombre suffisamment grand à l'échelle macroscopique pour pouvoir étudier les neutrons d'une manière globale et non individuelle et de les assimiler à des particules libres d'un fluide. C'est la raison pour laquelle les neutroniciens utilisent l'équation de Boltzmann de manière intense pour étudier le comportement des milieux multiplicateurs de neutrons.

### 2. Etablissement de l'équation de Boltzmann

L'équation de Boltzmann est l'équation qui régit le comportement des neutrons en fonction des variables d'espace, de vitesse et du temps. Elle est obtenue grâce à un bilan neutronique effectué sur un élément de volume du milieu dans lequel évoluent les neutrons (*bussac et Reuss, 1985*).

#### 2.1. Les principales hypothèses sur le transport des neutrons

L'établissement de l'équation de Boltzmann nécessite quelques hypothèses et simplifications principales qui sont : (*Verdier, 2005 ; Jammes, 1997*)

- ✓ Bien que les neutrons aient un aspect corpusculaire et ondulatoire, ce dernier est négligeable puisque la longueur d'onde du neutron  $\lambda(n)$  est très inférieure aux

dimensions caractéristiques d'un milieu macroscopique multiplicateur de neutrons. Les neutrons sont donc traités comme des particules selon l'approche de la physique classique et sont définis par leur position et leur vitesse (*Beckurts et Wirtz, 1964*) ;

- ✓ Les interactions neutrons-neutrons sont négligeables devant les interactions neutrons-noyaux. Ceci est une conséquence de la grande *dilution* des neutrons dans la matière (les neutrons sont  $10^{14}$  fois moins nombreux que les noyaux). Cette hypothèse a une grande importance puisqu'elle conduit à une forme linéaire de l'équation de Boltzmann ;
- ✓ La désintégration d'un neutron en un proton est négligeable ( $n = p + e^- + \bar{\nu}_e$ ) dans l'étude de transport. En effet, la durée de vie d'un neutron libre est de l'ordre de 15 minutes (*Zylaet al, 2020*) alors que le temps de vie moyenne du neutron avant d'être absorbé par des réactions nucléaires de capture ou de fission est de l'ordre de la milliseconde (entre  $10^{-5}$  et  $10^{-3}$  seconde) ce qui conduit à négliger la probabilité de désintégration devant la probabilité d'interaction avec le milieu ;
- ✓ Les effets relativistes sont négligeables parce que l'énergie maximale des neutrons issus de fission est de l'ordre de 20 MeV qui est très faible devant leur énergie de masse 939.56 MeV.

## 2.2. Quelques définitions fondamentales pour le transport des neutrons

Les grandeurs nécessaires pour décrire et établir l'équation de Boltzmann sont définies par : la densité des neutrons, le flux neutronique, le courant neutronique et le taux de réactions résumées dans le tableau suivant : (*Delclaux et al, 2013 ; Duderstadt et Hamilton, 1976*)

Grandeur		Notation usuelle	Définition
Densité de neutrons		$n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$	Nombre de neutrons à l'instant $t$ par unité de volume entourant le point $\vec{r}$ , par unité d'énergie en $E$ , par unité d'angle solide dans la direction $\vec{\Omega}$ .
Flux neutronique	Flux en phase	$\Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = n(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)v$	Nombre de neutrons de vitesse $v$ traversant perpendiculairement une surface unité situé en $\vec{r}$ par unité d'énergie en $E$ , d'angle

			solide dans la direction $\vec{\Omega}$ et de temps en $t$
	Flux scalaire	$\Phi(\vec{r}, E, t)$	Intégral en angle du flux en phase
Courant		$\vec{j}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \vec{\Omega} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$	Nombre de neutrons traversant une surface unité situé en $\vec{r}$ de normale $\vec{N}$ par unité d'énergie en $E$ d'angle solide dans la direction $\vec{\Omega}$ et de temps en $t$
Taux de réaction		$\tau(\vec{r}, E, t) = \Sigma(\vec{r}, E, t) \Phi(\vec{r}, E, t)$	Nombre de réaction par unité de volume et de temps

Tableau 2.1 Définition des grandeurs principales

### 2.3. L'équation de Boltzmann

Dans un élément de volume d'un milieu multiplicateur de neutrons, l'équation de Boltzmann est établie en considérant la variation du nombre de neutron perdus par fuite du milieu ou par réactions d'absorption et du nombre de neutrons produits par réactions de collisions ou de fission ou par une source externe de neutrons (*bussac et Reuss, 1985 ; Verdier, 2005 ; Guérin, 2007*).

#### 2.3.1. Les réactions de production des neutrons

La production des neutrons se fait par la contribution des réactions de fission, la présence de sources internes ou externes ainsi que les réactions de diffusions qui font passer les neutrons d'un état énergétique donné vers un autre.

##### 2.3.1.1. Apparition par diffusion

Il s'agit des réactions de collision des neutrons avec les noyaux du milieu. Les neutrons initialement animés d'une énergie  $E'$  et se déplaçant suivant une direction  $\vec{\Omega}'$  sont diffusés après collision et se retrouvent avec une énergie  $E$  et évoluant dans une direction  $\vec{\Omega}$ . Le nombre de neutrons qui entrent par diffusion dans le volume  $dV$  par unité de temps est :

$$R_s = \iint_{\Omega, E} \Sigma_s(\vec{r}, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, E' \rightarrow E, t) \Phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) d^2\Omega' dE' dV \quad (Eq.2.1)$$

Le terme  $\Sigma_s(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) dV$  représente le taux de réactions par diffusion engendré dans le volume  $dV$ .

### 2.3.1.2. Source de neutrons

On distingue deux types de sources de neutrons : (Verdier, 2005)

- Les sources de neutrons dites internes et qui sont généralement représentées par les réactions de fissions dans le milieu multiplicateurs de neutrons ;
- Les sources externes qui représentent l'apport des neutrons dans le milieu par des sources situées à l'extérieur de l'espace défini par le milieu considéré.

De manière générale, les sources de fission comportent deux termes : un terme de neutrons prompts caractérisés par un spectre de fission  $\chi_{prompt}(E)$  et un terme de neutrons retardés caractérisés par l'émission des neutrons par les produits de fission et représenté par un spectre  $\chi_{retardé,i}(E)$ .

#### a. Source de neutrons prompts

Le nombre de neutrons prompts produits dans le milieu par unité de temps est :

$$S_f = \chi_{prompt}(E) \iint_{\Omega, E'} \nu_{prompt}(E') \Sigma_f(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) \Phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) d^2\Omega' dE' dV \quad (Eq.2.2)$$

où le terme  $\iint_{\Omega, E'} \nu_{prompt}(E') \Sigma_f(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) \Phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) d^2\Omega' dE' dV$  représente le nombre total de neutrons prompts émis par fission.

$\chi_{prompt}(E)$  est la distribution des énergies des neutrons de fission qui est généralement donnée par les fonctions de Watt ou de Maxwell représentées successivement par les expressions :

$$f_w(E, E_f, T_w) = \frac{e^{-\frac{E}{T_w}}}{\sqrt{\pi E_f T_w}} \sinh\left(\frac{2\sqrt{EE_f}}{T_w}\right) e^{-\frac{E}{T_w}} \quad (Eq.2.3.1)$$

$$f_M(E, T) = \frac{2}{\sqrt{\pi T^3}} \sqrt{E} e^{-\frac{E}{T}} \quad (\text{Eq.2.3.2})$$

Avec :

$E$  : L'énergie cinétique moyenne du neutron prompt

$E_f$  : L'énergie cinétique moyenne des fragments rapportés à un nucléon

$T$  : La température exprimée en MeV

et dont les énergies moyennes sont de l'ordre de 1,98 MeV pour la distribution de Watt et 1,943 MeV pour la distribution de Maxwell (Berge, 2015 ; Sardet, 2015).

b. Source de neutrons retardés

Le nombre de neutrons retardés émis par les produits de fission par unité de temps est :

$$S_r = \sum_{i=1}^6 \chi_{\text{retardé},i}(E) \lambda_i C_i(\vec{r}, t) dV \quad (\text{Eq.2.4})$$

$C_i(\vec{r}, t)$  est la concentration des précurseurs du groupe  $i$  des produits de fission situés en  $\vec{r}$  et au temps  $t$ ,  $\lambda_i$  est la constante radioactive du même groupe.

c. Source de neutrons externe

Il s'agit des sources situées à l'extérieure du milieu multiplicateur de neutrons et qui dirigent leurs neutrons vers le milieu. Elles peuvent être de diverses origines telles que les sources de fissions, les sources isotopiques de neutrons ou des accélérateurs de particules chargées lancées sur des cibles à production de neutrons. Elles peuvent fonctionner en mode continue ou en mode pulsé et peuvent dans certaines conditions gouverner l'évolution de la population des neutrons dans le milieu multiplicateur de neutrons à l'exemple des configurations des réacteurs nucléaires gouvernés par accélérateurs dits aussi ADS (Accelerator Driven Systems) (Bowman, 1998).

### 2.3.2. Le terme de perte des neutrons

La perte des neutrons est due aux absorptions, aux diffusions ou aux fuites à travers les surfaces délimitant le volume élémentaire autour de point  $\vec{r}$ . Les absorptions conduisent à la disparition des neutrons tandis que les réactions de diffusion font passer les neutrons d'une gamme d'énergie à une autre gamme suivant une nouvelle direction de propagation, dans l'intervalle de temps  $dt$ .

### 2.3.2.1. Perte par absorption ou diffusion

Le nombre de neutrons perdus par absorption ou par diffusion par unité de temps est donné par la formule suivante :

$$R_t = \Sigma_t(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) dV \quad (Eq.2.5)$$

$\Sigma_t$  est la section efficace macroscopique totale (absorption et diffusion).

### 2.3.2.2. Perte par fuites

Le nombre total de neutrons quittant le volume  $dV$  par unité de temps est :

$$F = \oint_s N(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \vec{v} \cdot d\vec{s} \quad (Eq.2.6)$$

que l'on peut écrire en utilisant la relation entre le flux et la densité des neutrons :

$$\Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = N(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) v \quad (Eq.2.7)$$

Donc, on peut exprimer le nombre total de neutrons sortant du volume par unité de temps par la formule suivante :

$$F = \oint_s \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \cdot \vec{\Omega} \cdot d\vec{s} \quad (Eq.2.8)$$

Avec :

$$\begin{aligned} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \cdot \vec{\Omega} \cdot d\vec{s} &= \text{div}(\vec{\Omega} \Phi) dV \\ &= (\vec{\Omega} \cdot \text{grad} \Phi + \Phi \cdot \text{div}(\vec{\Omega})) dV \end{aligned}$$



$$\Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \cdot \vec{\Omega} d\vec{s} = (\vec{\Omega} \cdot \overrightarrow{\text{grad}} \Phi) dV \quad (\text{Eq.2.9})$$

Le terme de fuite est écrit sous la forme suivante :

$$F = \int_{dV} \vec{\Omega} \cdot \overrightarrow{\text{grad}} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) dV \quad (\text{Eq.2.10})$$

$\vec{\Omega} \cdot \overrightarrow{\text{grad}} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  est considéré comme uniforme sur l'ensemble du volume, on obtient finalement le terme de fuite :

$$F = \vec{\Omega} \cdot \overrightarrow{\text{grad}} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \quad (\text{Eq.2.11})$$

La variation de la population des neutrons avec le temps s'écrit sous la forme suivante : (*bussac et Reuss, 1985*)

$$\frac{\partial N(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} dV = \frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} dV \quad (\text{Eq.2.12})$$

La variation du nombre de neutrons est égale à la somme algébrique des termes obtenus précédemment. Cette égalité conduit à la forme intégralo-différentielle de l'équation de Boltzmann donnée par : (*Bussac et Reuss, 1985 ; Bell et Glasstone, 1970*)

$$\begin{aligned} \frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} &= -\vec{\Omega} \cdot \overrightarrow{\text{grad}} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) - \Sigma_t(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \\ &+ \iint_{\vec{\Omega}, E} \Sigma_s(\vec{r}, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, E' \rightarrow E, t) \Phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t) d^2\Omega' dE' \\ &+ S(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \end{aligned} \quad (\text{Eq.2.13})$$

$S(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  Présente le terme de source de fission et source externe ( $S = S_f + S_r + S_{\text{exterieur}}$ ).

On peut écrire l'équation de Boltzmann sous la forme simplifiée suivante (*Verdier, 2005*)

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)}{\partial t} = -\text{div} \vec{j}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) - \hat{R} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) + \hat{Q} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) \quad (\text{Eq.2.14})$$

Avec :

- $\vec{\Omega} \cdot \vec{\text{grad}} \Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \text{div} \vec{j}(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$

- $\hat{R}$  l'opérateur de disparition tel que :

$$\hat{R}\Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \Sigma_t(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)\Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$$

- $\hat{Q}$  l'opérateur d'émission tel que :

$$\hat{Q}\Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \iint_{\Omega, E} \Sigma_s(\vec{r}, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, E' \rightarrow E, t)\Phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t)d^2\Omega'dE' + S(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$$

L'équation de Boltzmann peut être mise sous la forme intégrale, forme qui constitue le point de départ de certaines méthodes numériques, en particulier les méthodes de type Monte-Carlo. La forme intégrale s'écrit sous la forme suivante :

$$\Phi(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \int_0^\infty \exp(-\tilde{\Sigma}s)q\left(\vec{r} - s\vec{\Omega}, E, \vec{\Omega}, t - \frac{s}{v}\right)ds \quad (Eq.2.15)$$

- $q(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t) = \int_0^\infty dE' \int_{4\pi} \Sigma_s(\vec{r}, E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega})\Phi(\vec{r}, E', \vec{\Omega}', t)dE'd^2\Omega' + S(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$

Représente le nombre de départ en un point  $\vec{r}$ , à l'énergie  $E$ , dans la direction  $\vec{\Omega}$  et à l'instant  $t$ .

- $\exp(-\tilde{\Sigma}s)$  : proportion de neutrons qui partant du point  $\vec{r} - s\vec{\Omega}$  dans la direction  $\vec{\Omega}$  parviennent en  $\vec{r}$  sans subir de choc.
- $\Sigma_s(\vec{r}, E' \rightarrow E, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega})$  : section différentielle de transfert.
- $S(\vec{r}, E, \vec{\Omega}, t)$  : source de neutrons.

La variété des situations à étudier en physique des réacteurs a conduit à de nombreuses méthodes de résolution de l'équation de Boltzmann. Ces méthodes diffèrent selon le degré de complexité du problème à étudier. Toutefois, elles peuvent être classées en (*Delclaux et al, 2013 ; Bell et Glasstone, 1970*) :

1. méthodes analytiques ayant pour but d'étudier un cas particulier et plus simple du comportement de la population neutronique, et qui englobent également les méthodes approximatives qui servent à changer la forme d'origine de l'équation du transport comme l'équation de la diffusion ;
2. et les méthodes numériques : déterministes comme la méthode  $S_N$  et stochastiques comme la méthode de Monte-Carlo.

Dans ce qui suit, on va focaliser notre étude sur l'approximation de la diffusion qui sera utilisée plus tard pour étudier la criticité dans le réacteur ZR9.

### 3. Approximation de la diffusion

L'équation de Boltzmann est une équation exacte du comportement des neutrons mais elle est très complexe et n'a pas de solution analytique générale. De plus, le traitement numérique de cette équation reste coûteux et nécessite le plus souvent des simplifications. Donc, on s'est intéressé à une approximation de cette équation et sa mise sous la forme d'une équation de diffusion qui nous permet de calculer des solutions proches de la réalité.

L'approximation de la diffusion est une simplification largement adoptée et très intéressante parce qu'elle nous permet d'éliminer la dépendance en phase en supposant que les milieux sont isotropes. Elle permet d'exprimer le transport des particules grâce à un opérateur mathématique simple qui est le Laplacien.

Les grandeurs utilisées tel que le flux  $\Phi(\vec{r}, E, t)$ , le courant de neutrons  $\vec{j}(\vec{r}, E, t)$  et la densité neutronique  $n(\vec{r}, E, t)$  sont intégrées sur  $\bar{\Omega}$ . Elle repose aussi sur la loi de Fick qui relie le courant neutronique au gradient de flux de neutrons. Le coefficient de proportionnalité est appelé coefficient de diffusion « D » soit : (Reuss, 2003 ; Duderstadt et Hamilton, 1976)

$$\vec{j}(\vec{r}, E, t) = -D(\vec{r}, E) \cdot \overrightarrow{\text{grad}}\Phi(\vec{r}, E, t) \quad (\text{Eq.2.16})$$

En introduisant la loi de Fick dans l'équation du bilan et on effectuant les approximations précédentes, on aboutit à une équation plus simple qui s'écrit sous la forme suivante :

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, E, t)}{\partial t} = -\vec{\nabla} \cdot \left[ -D(\vec{r}, E) \overrightarrow{grad} \Phi(\vec{r}, E, t) \right] - \Sigma_t(\vec{r}, E) \Phi(\vec{r}, E, t) + \int_E \Sigma_s(\vec{r}, E' \rightarrow E) \Phi(\vec{r}, E', t) dE' + S(\vec{r}, E, t) \quad (Eq.2.17)$$

### 3.1. Les conditions de validité de l'équation de diffusion

L'approximation de la diffusion est valable dans le cas où les variations dans l'espace et en cours du temps sont lentes, donc : (*Reuss, 2003 ; Duderstadt et Hamilton, 1976*)

- Les sections efficaces sont des constantes, indépendantes de la position, impliquant un milieu uniforme et homogène ;
- Les sections efficaces sont indépendantes du temps au sens que leurs variations avec le temps sont très lentes devant le temps de vie du neutron ;
- La diffusion est isotrope ;
- Le flux ne varie pas de façon appréciable pendant le laps de temps nécessaire à un neutron pour faire un parcours sans choc représenté par son libre parcours moyen ;
- Le taux d'absorption est faible devant le taux de diffusion.

L'équation de la diffusion se met alors sous la forme :

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, E, t)}{\partial t} = D \Delta \Phi(\vec{r}, E, t) - \Sigma_t(E) \Phi(\vec{r}, E, t) + \int_E \Sigma_s(E' \rightarrow E) \Phi(\vec{r}, E', t) dE' + S(\vec{r}, E, t) \quad (Eq.2.18)$$

### 3.2. Equation de la diffusion pour des neutrons monocinétiques

Pour des neutrons monocinétiques (mono-énergétiques) il n'y a plus de disparition et d'apparition des neutrons par diffusion parce que tous les neutrons ont la même énergie, par conséquence la section efficace totale est remplacée par la section efficace d'absorption et le terme  $\int_E \Sigma_s(E' \rightarrow E) \Phi(\vec{r}, E', t) dE'$  disparaît de l'équation (*Bussac et Reuss, 1985 ; Duderstadt et Hamilton, 1976*). Dans le terme de source de neutrons par fission ( $S_f$ ) il n'y a plus d'intégration sur l'énergie, il s'écrit sous la forme  $S_f = \nu \Sigma_f \Phi(\vec{r}, t)$  Dans ce cas l'équation de diffusion devient alors :

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, t)}{\partial t} = D \Delta \Phi(\vec{r}, t) - \Sigma_a \Phi(\vec{r}, t) + \nu \Sigma_f \Phi(\vec{r}, t) + S_p(\vec{r}, t) + S_{ex}(\vec{r}, t) \quad (Eq.2.19)$$

En l'absence de source externe et en négligeant la fraction des neutrons retardés émis suite aux réactions de fission, l'équation de la diffusion est la suivante :

$$\begin{aligned} \frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(\vec{r}, t)}{\partial t} &= D \Delta \Phi(\vec{r}, t) - \Sigma_a \Phi(\vec{r}, t) + \nu \Sigma_f \Phi(\vec{r}, t) \\ &= D \Delta \Phi(\vec{r}, t) + (\nu \Sigma_f - \Sigma_a) \Phi(\vec{r}, t) \end{aligned} \quad (Eq.2.20)$$

Le flux neutronique peut être calculé en résolvant l'équation de diffusion. Cette équation est une équation différentielle partielle et il est nécessaire de spécifier certaines conditions aux limites qui doivent être satisfaites par la solution. Une de ces conditions concerne la nature physique du flux qui doit être une fonction réelle, non négative puisque un flux négatif ou imaginaire n'a pas de sens physique, il doit également être fini et s'annule à la surface.

### 3.3. L'équation de la diffusion pour un état stationnaire

La plupart du temps, un réacteur fonctionne en régime stationnaire, c'est-à-dire sa population de neutrons ne varie pas au cours du temps. A chaque génération on a le même nombre de neutrons qu'à la génération précédente. Dans ce cas le flux neutronique est indépendant du temps et on peut écrire l'équation de la diffusion sous la forme suivante : (*Bussac et Reuss, 1985 ; Duderstadt et Hamilton, 1976*)

$$D \Delta \Phi(\vec{r}) + (\nu \Sigma_f - \Sigma_a) \Phi(\vec{r}) = 0 \quad (Eq.2.21)$$

On remarque que si  $\nu \Sigma_f < \Sigma_a$  le facteur  $(\nu \Sigma_f - \Sigma_a)$  est négatif et donc aucune nouvelle propriété n'apparaît, mais pour un milieu multiplicateur  $((\nu \Sigma_f - \Sigma_a) > 0)$  on peut écrire l'équation précédente sous la forme suivante :

$$\Delta \Phi(\vec{r}) + B_m^2 \Phi(\vec{r}) = 0 \quad (Eq.2.22)$$

$B_m^2$  est appelé laplacien matière qui dépend des propriétés physique du milieu considéré.

$$B_m^2 = \frac{\nu \Sigma_f - \Sigma_a}{D} \quad (Eq.2.23)$$

La résolution de cette équation nous amène à considérer un problème purement géométrique où il faut trouver les fonctions propres  $f_n$  et les valeurs propres  $b_n$  du Laplacien qui dépendent toutes les deux des conditions aux limites et donc de la géométrie du domaine.

Il existe une suite infinie de valeurs propres qui sont toutes réelles et positives, comme elles peuvent être ou non dégénérées. Seule la première valeur propre non dégénérée  $b_0$  est qualifiée de Laplacien géométrique et sa fonction propre associée  $f_0$  est l'unique fonction qui conserve le même signe dans tout le domaine étudié (*Bussac et Reuss, 1985; Reuss, 2003*).

Cela nous conduit à obtenir une condition nécessaire de l'existence d'une population neutronique stationnaire, c'est la condition de criticité (égalité entre le Laplacien matière et le Laplacien géométrique):

$$B_m^2 = b_0^2 \quad (Eq.2.24)$$

#### 4. Théorie de diffusion multi-groupes

Dans un milieu multiplicateur de neutrons, les neutrons présentent une distribution d'énergie qui peut être très large et s'étale sur plusieurs décades. Cette distribution doit être prise en compte dans l'équation de diffusion. Les neutrons sont émis par des réactions de fission avec un spectre d'énergie continue et cette distribution s'élargit à mesure que les neutrons diffusent dans le milieu, perdant de l'énergie lors des collisions élastiques et inélastiques. Dans les réacteurs thermiques, la plupart des neutrons de fission sont progressivement ralentis jusqu'aux énergies thermiques avant d'être absorbés, alors que dans les réacteurs rapides, les neutrons peuvent induire des réactions de fissions sans être totalement thermalisés.

L'un des moyens les plus efficaces pour étudier la diffusion des neutrons est la méthode de diffusion en groupe. Le principe de la théorie multi-groupes consiste à diviser le spectre d'énergie  $[E_{\min}, E_{\max}]$  en un nombre fini de sous-intervalles appelés « groupes » numérotés de 1 à N par ordre décroissant d'énergie (*Bussac et Reuss, 1985; Bell et Glasstone, 1970*).

$$E_{\max} = E_0 > E_1 > \dots > E_{N-1} > E_N = E_{\min}$$

Le groupe de neutrons numéro « g » ( $0 < g < N$ ) est constitué par l'ensemble de neutrons dont l'énergie se trouve dans l'intervalle numéro « g », c'est-à-dire l'intervalle  $[E_{g-1}, E_g]$ , leur diffusion et leur absorption sont décrites en termes de coefficients de diffusion et de sections efficaces convenablement moyennés.

Dans chacun des groupes d'énergie, les neutrons sont traités comme s'ils étaient monocinétiques. En régime stationnaire, l'équation de diffusion pour un groupe g donné s'écrit sous la forme suivante :

$$D_g \Delta \Phi_g(\vec{r}) - \Sigma_{a,g} \Phi_g(\vec{r}) - \sum_h \Sigma_{g \rightarrow h} \Phi_g(\vec{r}) + \sum_h \Sigma_{h \rightarrow g} \Phi_h(\vec{r}) + \chi_g \sum_h \nu \Sigma_{f,h} \Phi_h(\vec{r}) = 0 \quad (Eq.2.25)$$

Avec :

- $D_g \Delta \Phi_g(\vec{r})$  : représente le terme de fuites ;
- $\Sigma_{a,g} \Phi_g(\vec{r})$  : représente le terme des absorptions ;
- $\sum_h \Sigma_{g \rightarrow h} \Phi_g(\vec{r})$  : représente les disparitions par transfert d'un groupe à un autre groupe ;
- $\sum_h \Sigma_{h \rightarrow g} \Phi_h(\vec{r})$  : représente les apports par transfert depuis un autre groupe ;
- $\chi_g \sum_h \nu \Sigma_{f,h} \Phi_h(\vec{r})$  : représente les apports par fission ;

Le traitement de l'équation de diffusion multi-groupes aboutit à un système couplé de N équations avec N inconnues qui sont les flux pour chaque groupe. Ces « N » équations sont couplées par les termes liés au transfert et à la fission.

#### 4.1. L'équation de diffusion à deux groupes

L'équation de diffusion à deux groupes est un cas particulier de l'équation de diffusion multi-groupes dont lequel on considère deux groupes de neutrons ( $N=2$ ), l'un pour les neutrons rapides et épi-thermiques et l'autre groupe pour les neutrons thermiques. Dans ce cas le système d'équation s'écrit sous la forme suivante : (Reuss, 2003 ; Lewis, 2008)

- Pour le groupe des neutrons rapides :

Fuite – absorption - disparition par transfert + fission rapide + fission thermique = 0

$$D_1 \Delta \Phi_1(\vec{r}) - \Sigma_{a1} \Phi_1(\vec{r}) - \Sigma_r \Phi_1(\vec{r}) + \nu \Sigma_{f1} \Phi_1(\vec{r}) + \nu \Sigma_{f2} \Phi_2(\vec{r}) = 0 \quad (Eq.2.26)$$

- Pour le groupe des neutrons thermiques :

Fuite – absorption + transfert de neutrons depuis le premier groupe = 0

$$D_2 \Delta \Phi_2(\vec{r}) - \Sigma_{a2} \Phi_2(\vec{r}) + \Sigma_r \Phi_1(\vec{r}) = 0 \quad (Eq.2.27)$$

On peut simplifier l'écriture de ce système d'équation sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} D_1 \Delta \Phi_1(\vec{r}) - \Sigma_1 \Phi_1(\vec{r}) + S_r &= 0 \\ D_2 \Delta \Phi_2(\vec{r}) - \Sigma_{a2} \Phi_2(\vec{r}) + S_{th} &= 0 \end{aligned} \quad (Eq.2.28)$$

$S_r$  et  $S_{th}$  représente les sources de neutrons rapides et thermiques respectivement,  $\Sigma_1$  représente la section efficace macroscopique de disparition du premier groupe ( $\Sigma_1 = \Sigma_{a1} + \Sigma_r$ ) et  $\Sigma_{a2}$  représente la section efficace macroscopique d'absorption du deuxième groupe.

Pour un calcul à deux groupes, on peut généralement supposer que :

- il n'y a pas d'absorption de neutrons dans le groupe rapide ;
- l'absorption résonante est prise en considération par l'introduction de la probabilité d'échappement par absorption résonante « le facteur antitrappe  $p$  » ;
- Les fissions induites par les neutrons rapides sont prises en compte par le facteur de fission rapide «  $\epsilon$  » tel que :  $\nu \Sigma_{f1} \Phi_1(\vec{r}) + \nu \Sigma_{f2} \Phi_2(\vec{r}) = \epsilon \nu \Sigma_{f2} \Phi_2(\vec{r})$

Dans ce cas les termes  $S_r$  et  $S_{th}$  s'écrivent alors :

**a. source de neutrons rapides**



Le nombre de neutrons thermiques absorbés est  $\Sigma_a \Phi_2$ , donc le nombre de neutrons rapides produits à partir de la fission thermique est  $\eta f \Sigma_a \Phi_2$ . On ajoute également le terme  $\frac{1}{k_{eff}}$  pour prendre en compte la variation des neutrons par fission afin d'obtenir une distribution neutronique en régime stationnaire. Physiquement, l'introduction du  $k_{eff}$  permet d'ajuster les productions par fission afin de rétablir l'équilibre entre les productions et les disparitions (Lewis, 2008). En multipliant par le facteur de fission rapide on obtient finalement le nombre de neutrons rapides produits par  $cm^3.s$  :

$$S_r = \frac{\varepsilon \eta f \Sigma_a}{k_{eff}} \Phi_2 = \frac{k_{\infty} \Sigma_a}{k_{eff} P} \Phi_2 \quad (Eq.2.29)$$

### b. Source de neutrons thermiques

Les neutrons thermiques produits sont les neutrons retirés du groupe rapide multiplié par la probabilité d'échappement par absorption résonante (le facteur antitrappe  $p$ ) pour tenir compte de ceux perdus pour être capturés dans le combustible (Lewis, 2008). Le nombre de neutrons thermiques produits par  $cm^3.s$  est :

$$S_{th} = p \Sigma_r \Phi_1 \quad (Eq.2.30)$$

$\Sigma_r$  est la section efficace macroscopique de transfert des neutrons rapides vers des neutrons thermiques (removal cross section).

En introduisant les expressions des sources  $S_r$  et  $S_{th}$  dans l'équation de diffusion à deux groupes on obtient :

$$\begin{cases} D_1 \Delta \Phi_1(\vec{r}) - \Sigma_r \Phi_1(\vec{r}) + \frac{k_{\infty} \Sigma_a}{k_{eff} P} \Phi_2(\vec{r}) = 0 \\ D_2 \Delta \Phi_2(\vec{r}) - \Sigma_a \Phi_2(\vec{r}) + p \Sigma_r \Phi_1(\vec{r}) = 0 \end{cases} \quad (Eq.2.31)$$

Pour un réacteur uniforme, nous pouvons représenter la dépendance spatiale des flux avec les équations de Helmholtz: (Lewis, 2008)

$$\begin{aligned}\Delta\Phi_1 + B^2\Phi_1 &= 0 \\ \Delta\Phi_2 + B^2\Phi_2 &= 0\end{aligned}\tag{Eq.2.32}$$

$B^2$  (Geometric buckling) dépend de la géométrie du système. Les flux doivent être finis, positifs, présenter les symétries du système et s'annuler à l'infini (Reuss, 2003 ; Lewis, 2008).

Les équations de diffusion à deux groupes obtenues (Eq.2.31) sont un système d'équation différentielle qu'on peut transformer en un système d'équations linéaires indépendantes en utilisant l'équation (Eq.2.32). Dans ce cas l'équation de diffusion à deux groupes s'écrit sous la forme suivante :

$$\begin{aligned}-D_1B^2\Phi_1 - \Sigma_r\Phi_1 + \frac{k_\infty\Sigma_a}{k_{eff}P}\Phi_2 &= 0 \\ -D_2B^2\Phi_2 - \Sigma_a\Phi_2 + p\Sigma_r\Phi_1 &= 0\end{aligned}\tag{Eq.2.33}$$

Qu'on peut le simplifier sous la forme :

$$\begin{bmatrix} -(B^2D_2 + \Sigma_a) & p\Sigma_r \\ \frac{k_\infty\Sigma_a}{k_{eff}P} & -(B^2D_1 + \Sigma_r) \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \Phi_2 \\ \Phi_1 \end{pmatrix} = 0\tag{Eq.2.34}$$

Selon la règle du Cramer, ce système n'a de solution que si le déterminant de la matrice issue de ce système d'équation est égal à zéro, cela nous conduit à :

$$\begin{vmatrix} -(B^2D_2 + \Sigma_a) & p\Sigma_r \\ \frac{k_\infty\Sigma_a}{k_{eff}P} & -(B^2D_1 + \Sigma_r) \end{vmatrix} = 0\tag{Eq.2.35}$$

Finalement on aboutit à la condition de résolution des équations de diffusion à deux groupes et qui s'écrit comme suit :

$$k_{eff} = \frac{k_\infty}{(1 + B^2L_1^2)(1 + B^2L_2^2)}\tag{Eq.2.36}$$

$L_1$  et  $L_2$  sont respectivement la longueur de diffusion rapide et thermique.

$$\begin{aligned} L_1 &= \sqrt{\frac{D_1}{\Sigma_r}} \\ L_2 &= \sqrt{\frac{D_2}{\Sigma_a}} \end{aligned} \quad (Eq.2.37)$$

$D_1$  est le coefficient de diffusion rapide et  $D_2$  est le coefficient de diffusion thermique.

L'équation obtenue peut s'écrire sous la forme d'une équation quadratique en  $B^2$  comme suit :

$$(B^2)^2 + \left( \frac{1}{L_1^2} + \frac{1}{L_2^2} \right) B^2 + \frac{1 - k_\infty / k_{eff}}{L_1^2 L_2^2} = 0 \quad (Eq.2.38)$$

Cette équation possède deux racines qui sont :

$$\begin{aligned} \mu^2 &= \frac{-M^2 + \sqrt{M^4 + 4L_{1c}^2 L_{2c}^2 \left( \frac{k_\infty}{k_{eff}} - 1 \right)}}{2L_{1c}^2 L_{2c}^2} \\ \nu^2 &= \frac{-M^2 - \sqrt{M^4 + 4L_{1c}^2 L_{2c}^2 \left( \frac{k_\infty}{k_{eff}} - 1 \right)}}{2L_{1c}^2 L_{2c}^2} \end{aligned} \quad (Eq.2.39)$$

La solution générale des équations de diffusion à deux groupes (Eq.2.31) est une combinaison linéaire des solutions des équations suivantes : (Reuss, 2003)

$$\begin{cases} \Delta X + \mu^2 X = 0 \\ \Delta Y - \nu^2 Y = 0 \end{cases} \rightarrow \begin{cases} \Phi_1 = AX + CY \\ \Phi_2 = S_1 AX + S_2 CY \end{cases} \quad (Eq.2.40)$$

$S_1$  et  $S_2$  étant les constantes de couplage. Les solutions  $X$  et  $Y$  dépendent de la géométrie à étudier du réacteur nucléaire. L'application des conditions de continuité des flux et des courants entre le cœur et le réflecteur nous conduit à obtenir la condition de criticité. Cela nécessite la connaissance de la géométrie du réacteur et sa composition chimique, qui seront développées dans le chapitre suivant.

---

## **Chapitre 3 : Etude neutronique de la zone ZR9 d'Oklo**

---

## 1. Introduction

Pour réaliser une étude neutronique des conditions de criticité des réacteurs nucléaires naturels d'Oklo, il est nécessaire de déterminer en premier lieu les principaux paramètres géométriques et physiques de la zone de réaction à étudier. Pour cela, il faut prendre en considération les différentes observations et constatations du terrain et les relevés géologiques de la zone. Ce que l'on sait est que les formes actuelles des réacteurs naturels ne sont pas celles qu'ils avaient au moment du fonctionnement il y a de cela deux milliard d'années. Il est évident qu'ils ont subi plusieurs modifications géométriques pendant et après leur fonctionnement (*Naudet, 1991 ; Bentriddi, 2012*). Ces modifications géométriques sont causées par les mouvements tectoniques survenus depuis leurs arrêts, alors que les processus thermo-hydrauliques avaient engendré des modifications pendant le fonctionnement des réacteurs.

De plus, les réacteurs naturels d'Oklo sont des systèmes irréguliers et hétérogènes où on peut observer des variations de forme et de composition chimique dans le sens transversal et longitudinal. Ils sont fortement hétérogènes à l'inverse des réacteurs industriels qui possèdent des formes régulières et homogènes. Ces hétérogénéités de forme et de composition posent des difficultés dans le calcul des sections efficaces d'interactions des neutrons avec la matière. Toutefois, pour étudier l'influence de l'hétérogénéité de forme sur la neutronique du système, on procède à la comparaison des dimensions de la zone de réaction et du libre parcours moyen des neutrons qui y évoluent. Dans le cas où les interactions des neutrons sont peu sensibles aux variations des compositions chimiques à l'échelle centimétrique, il est permis de considérer le système comme un milieu homogène (*Bentriddi, 2012*).

## 2. Définition du modèle géométrique et physique du ZR9

### 2.1. Définition du modèle géométrique

Dans la plupart des travaux effectués sur les réacteurs naturels d'Oklo, la géométrie des zones de réactions a été approximée par une forme cylindrique entourée par des réflecteurs (*Gould et al, 2006; Petrov et al, 2005; Bentriddi et al, 2013*).

Le choix de la forme cylindrique comme modèle géométrique est basé sur les observations géologiques faites in situ à partir desquelles il a été déduit que les zones de réactions ont tendance à s'étendre sur un plan subparallèle aux couches stratigraphiques en prenant une forme proche d'une lentille comme on l'a vu dans le premier chapitre (*Gauthier-Lafaye, 1978*). Ces

observations justifient le choix de la géométrie cylindrique. Dans le présent travail, la même géométrie cylindrique est adoptée pour modéliser la zone de réaction n°9 (ZR9).

De façon similaire aux études précédentes sur la modélisation et la simulation du ZR9 (*Bentridi et al. 2011b*), on va considérer dans ce qui suit deux configurations : un modèle hypothétique d'un cœur cylindrique du réacteur sans réflecteurs et un modèle, plus proche de la situation réelle, où le cœur du réacteur est entouré de réflecteurs.

### 2.1.1. Cœur cylindrique sans réflecteurs

Dans une première approche, nous considérons un cœur cylindrique nu de rayon «  $R$  » et d'épaisseur «  $H$  » et sans réflecteurs comme illustré par la figure 3.1. Ces paramètres géométriques définissent respectivement l'extension radiale et axiale du réacteur. A la base des observations géologiques, l'épaisseur «  $H$  » du réacteur est relativement faible devant son extension radiale «  $R$  ». De plus, il est évident que l'épaisseur initiale doit être supérieure à l'épaisseur du réacteur à l'état final (*Naudet, 1991*).

Malgré la simplicité de cette géométrie, il n'en demeure pas moins qu'elle permet d'avoir des résultats acceptables.

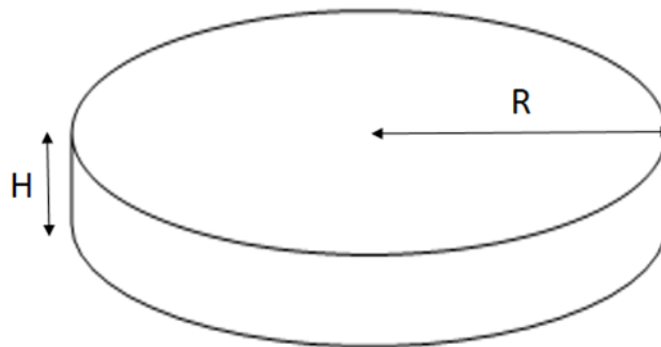


Figure 3.1 Modèle géométrique du cœur sans réflecteur

### 2.1.2. Cœur cylindrique avec réflecteurs

Afin de rendre le modèle plus réaliste en prenant en considération l'environnement géologique qui entoure le cœur du réacteur, nous avons pris en compte la présence de réflecteurs (Fig.3.2) où on a supposé que le cœur cylindrique est entouré de réflecteurs latéraux et axiaux de dimensions finies. Les réflecteurs axiaux représentent les couches sédimentaires qui sont

situées au-dessus et au-dessous du cœur et le réflecteur latéral représente l'environnement qui entoure le cœur. Le réflecteur latéral est un tube de hauteur «  $H$  », de rayon intérieur «  $R$  » et d'épaisseur «  $d$  » tandis que les réflecteurs axiaux sont deux cylindres de hauteur  $d = H$  et de rayon  $R$  qui se situent en haut et en bas du cœur et qui ne s'étendent pas au rayon extérieur ( $R+d$ ) du réflecteur latéral, ce qui veut dire qu'on va ignorer l'effet des coins. Lorsque le réflecteur entoure complètement le cœur, la présence des coins rend impossible une solution analytique à cause des complications dues aux termes d'interactions entre les réflecteurs axiaux et latéraux. Par ailleurs et pour rendre possible le calcul analytique tout en s'approchant le plus possible du cas réel, l'épaisseur «  $d$  » des réflecteurs est prise égale à l'épaisseur du cœur «  $H$  ». Notons toutefois que l'épaisseur «  $d$  » est de plusieurs ordres de grandeurs plus grandes que le libre parcours moyen des neutrons.

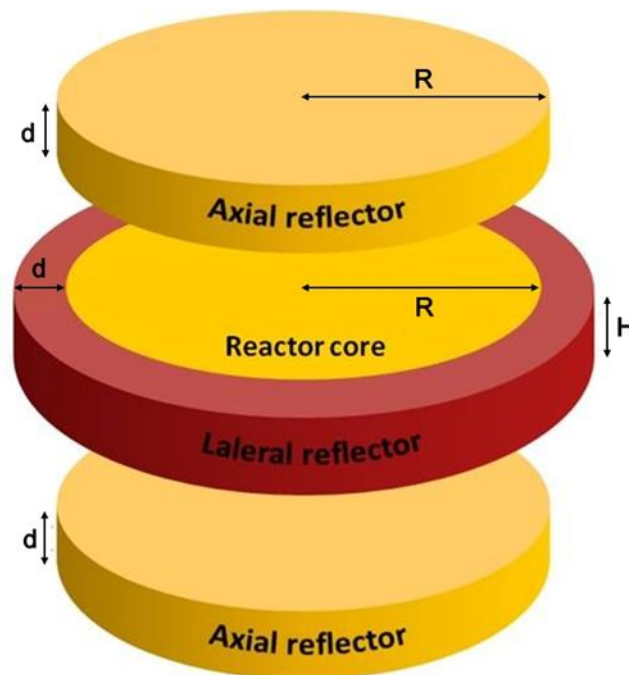


Figure 3.2 Modèle géométrique du cœur entouré de réflecteurs

## 2.2. Définition du modèle physique

Pour étudier la criticité du réacteur ZR9, nous avons besoin de connaître la composition chimique du minerai qui compose le cœur du réacteur que l'on va utiliser pour calculer les sections efficaces macroscopiques à travers la détermination des densités atomiques de chaque élément chimique constituant le minerai. Le modèle physique défini pour le minerai doit être plus proche de l'état initial du réacteur à travers une transposition qui s'avère nécessaire,

puisque nous n'avons pas la certitude que ce que nous voyons actuellement soit représentatif de ce qui était effectivement à l'époque des réactions. Selon les analyses chimiques et géochimiques effectuées sur plusieurs échantillons des zones de réactions, le minerai de type Oklo est composé de plusieurs constituants dans lesquels les plus considérables dans le calcul de criticité sont : (*Bentridi, 2012*)

1. l'uranium sous forme d' $UO_2$  ;
2. la gangue argileuse ;
3. le quartz non dissous ;
4. l'eau sous ses différentes formes (liquide, vapeur) ;
5. les poisons neutroniques.

Rappelons que le milieu est supposé homogène parce que l'hétérogénéité est faible devant le libre parcours moyen des neutrons.

Pour cela, et à la base des différents travaux effectués sur le réacteur ZR9, on va adopter la même approche volumique où le volume total d'un échantillon du minerai est défini par deux volumes : le volume solide et le volume fluide. Le volume solide est constitué d'uraninite  $UO_2$  comme combustible nucléaire et de la gangue qui est à son tour composée de quartz (silice) et d'argile (90% silice ( $SiO_2$ ) et 10% argile). L'argile est composée de Chlorite et d'Illite (*Bentridi et al, 2011a*). Dans ce travail, le minerai est supposé sans poisons. La composition chimique de la partie solide du minerai de type d'Oklo est illustrée dans le tableau 3.1.

Le volume fluide est situé dans toutes les formes de porosité de la roche. On définit la porosité d'une roche (un matériau solide) comme étant l'ensemble des vides qui peuvent être remplis par des fluides. Elle peut être remplie soit par l'eau soit par un hydrocarbure ou les deux en même temps.

Notons que le minerai à l'état initial était enfoui à 2000 m de profondeur ce qui correspond à une pression et une température de l'ordre de 200 bars et 150 °C respectivement (*Openshaw et al, 1977*). Dans ce cas, la densité volumique de l'eau en fonction de la pression et de la température du réacteur d'Oklo est:  $\rho_{H_2O}(200bars, 150^\circ C) = 0.9232 g/cm^3$  (*Ibekwe et al, 2020*). Selon le modèle adopté dans ce travail, la quantité d'uranium et la porosité apparente totale seront paramétrées par une fraction volumique désignées par  $V_{UO_2}$  et  $\Phi_T$  respectivement.



L'uraninite est définie comme la fraction volumique donnant le volume d'  $UO_2$  par  $1 \text{ cm}^3$  de minerai et la porosité apparente totale représente la fraction de volume libre pouvant contenir les fluides.

### 2.2.1. Détermination de la masse volumique du minerai

Pour calculer la masse volumique d'un matériau composite on utilise la fraction volumique de chacun de ses composantes. Ainsi, la masse volumique ( $\rho$ ) du minerai, constitué de trois composants principaux : uraninite, gangue et fluide, peut être calculée en utilisant la relation suivante :

$$\rho_{\text{minerai}} = V_{UO_2} \times \rho_{UO_2} + \Phi_T \times \rho_{\text{fluide}} + (1 - \Phi_T - V_{UO_2}) \times \rho_{\text{gangue}} \quad (\text{Eq.3.1})$$

Pour calculer la masse volumique de la gangue ( $\rho_{\text{gangue}}$ ) on utilise les relations suivantes :

$$\frac{1}{\rho_{\text{gangue}}} = \frac{\% \text{massique}(\text{quartz})}{\rho_{\text{quartz}}} + \frac{\% \text{massique}(\text{argile})}{\rho_{\text{argile}}} \quad (\text{Eq.3.2})$$

$$\frac{1}{\rho_{\text{argile}}} = \frac{\% \text{massique}(\text{chlorite})}{\rho_{\text{Chlorite}}} + \frac{\% \text{massique}(\text{Illite})}{\rho_{\text{Illite}}} \quad (\text{Eq.3.3})$$

En utilisant les données figurant dans le tableau 3.1 et en remplaçant les pourcentages massiques de l'argile et du quartz dans les relations précédentes tout en travaillant avec une argile équilibrée en Chlorite et en Illite, on aboutit à :

$$\frac{1}{\rho_{\text{argile}}} = \frac{5\%}{2.7} + \frac{5\%}{2.8} \Rightarrow \rho_{\text{argile}} = 2.749 \text{ g} / \text{cm}^3 \quad (\text{Eq.3.4})$$

$$\frac{1}{\rho_{\text{gangue}}} = \frac{90\%}{2.65} + \frac{10\%}{2.749} \Rightarrow \rho_{\text{gangue}} = 2.659 \text{ g} / \text{cm}^3 \quad (\text{Eq.3.5})$$

A partir de la fraction volumique ( $V_X$ ), on peut déterminer la fraction massique ( $f_X$ ) de chaque composant dans le minerai. Pour une valeur donnée de  $V_{UO_2}$  et de  $\Phi_T$ , les fractions massiques de l'uraninite, de la gangue et du fluide sont calculées à l'aide des relations suivantes :

$$\begin{aligned}
 f_{UO_2} &= V_{UO_2} \times \rho_{UO_2} \\
 f_{fluid} &= \Phi_T \times \rho_{fluid} \\
 f_{gangue} &= (1 - V_{UO_2} - \Phi_T) \times \rho_{gangue}
 \end{aligned}
 \tag{Eq.3.6}$$

Donc la relation ( Eq.3.1) peut être écrite sous la forme suivante :

$$\rho_{mineral} = f_{UO_2} + f_{fluid} + f_{gangue}
 \tag{Eq.3.7}$$

Connaissant la fraction massique et la composition chimique de chaque composant on peut déduire la densité atomique de chaque élément chimique dans le minéral.

### 2.2.2. Détermination de la densité atomique

La densité atomique d'un élément  $X$  est reliée à sa masse volumique  $\rho$  et son nombre de masse  $A$  par la relation :

$$N_x = \frac{N_A}{A} \times \rho
 \tag{Eq.3.8}$$

où  $N_A$  est le nombre d'Avogadro,  $N_A = 6.023 \times 10^{23} \text{ mol}^{-1}$

Dans notre cas, où le minéral est composé de plusieurs éléments chimiques, on peut calculer la densité de chaque élément à partir de sa fraction massique selon la relation suivante :

$$N_x = \frac{N_A}{A} \times f_x
 \tag{Eq.3.9}$$

### 2.2.3. Définition du domaine de variation des paramètres physiques

Les paramètres physiques qui influent directement sur la criticité du réacteur ZR9 sont la teneur en uranium et la porosité. Afin que l'on puisse aboutir aux calculs neutroniques concernant la zone RZ9, il faut déterminer le domaine de variation de la teneur en uranium et de la porosité.

A la base des travaux de Bentriddi et al, la porosité peut varier de 20% à 40% du volume d'une roche. Cet intervalle est défini par comparaison avec la capacité volumique des roches réservoirs d'un gisement pétrolier qui contient des hydrocarbures tout en soulignant que le gisement d'Oklo a un caractère pétrolier d'après les études géologiques de cette zone (Gauthier

<b>Minerai</b>						
<b>Le volume solide</b>				<b>Le Volume Fluide</b>		
Uraninite $UO_2$	Gangue			Eau $H_2O$	Hydrocarbure	Hydrocarbure + Eau
	90%	10%				
	Silice $SiO_2$	Argile				
		Chlorite	Illite			
$\rho(g/cm^3) = 10.6$	$\rho(g/cm^3) = 2.65$	$\rho(g/cm^3) = 2.70$	$\rho(g/cm^3) = 2.80$	$\rho(g/cm^3) = 0.9932$		

<b>L'uraninite</b>			<b>Silice</b>		
élément	masse atomique ( $g/mol$ )	Proportion (%)	élément	masse atomique ( $g/mol$ )	Proportion (%)
$U$	238.0289	88.15	$Si$	28.086	46.76
$O$	15.9999	1.85	$O$	15.9999	53.24

élément	La masse atomique g/mol	Chlorite			Illite		
		Atome/mesh	La masse (g)	% massique	Atome/mesh	La masse (g)	% massique
Si	28.086	3.17	89.03262	0.223742381	2.87	80.60682	0.130583004
Al	26.982	2.49	67.18518	0.168838929	3.22	86.88204	0.140748857

Mg	24.305	0.18	4.3749	0.010994291	1.04	25.2772	0.04094905
Fe	55.847	0.14	7.81858	0.019648391	2.88	160.83936	0.260559675
Na	23	0.03	0.69	0.001733996	0.02	0.46	0.0007452
K	39.098	0.72	28.15056	0.070743435	0.03	1.17294	0.001900162
O	15.9999	12.35	197.598765	0.496573259	16	255.9984	0.414717267
H	1.0079	3.05	3.074095	0.007725318	6	6.0474	0.009796785
				1			
					1		

Tableau 3.1 Composition chimique de la partie solide du minerai de la zone ZR9

Lafaye et al, 1977). Dans ce travail, la porosité est remplie seulement d'eau sous les conditions de température et de pression estimées à l'époque des réactions nucléaires à 150°C et 200 bars.

Les valeurs de  $V_{UO_2}$  sont autour d'une valeur de 5% et qui peuvent varier dans un intervalle entre 4% et 7% (Bentridi, 2012). Pour chaque valeur de  $V_{UO_2}$  on peut déduire la teneur d'uranium par rapport au minerai en utilisant la fraction massique d'uraninite, la proportion d'uranium dans l'uraninite et la densité volumique du minerai sec selon la relation :

$$t_U = \frac{f_{UO_2} \times 0.8815}{\rho_{\text{minerai}}} \quad (Eq.3.10)$$

Pour aboutir à déterminer la densité atomique de chaque isotope ( $^{235}U$ ,  $^{238}U$ ) constituant l'uranium, il faut préciser son enrichissement en  $^{235}U$  au moment du déclenchement des réactions nucléaires dans la zone de réaction à Oklo. Cela pose un problème majeur du fait que les valeurs d'enrichissement présentent des différences selon la méthode choisie pour la datation et la zone de réaction elle-même.

Si on adopte les méthodes de datation isotopique U-Pb et les produits de fission d'uranium, l'âge estimé est  $1950 \pm 50$  Ma (Gauthier-Lafaye, 1986). Dans ce cas, l'enrichissement en  $^{235}U$  vaut 3.7%. C'est cette valeur qu'on a finalement choisie d'utiliser dans la suite de ce travail en raison de sa précision et de son efficacité.

On arrive finalement à déterminer la composition en élément chimique du minerai à partir de ses composantes principales à savoir l'uraninite, la gangue et le fluide. Le tableau ci-dessous (Tab.3.2) regroupe les résultats de calcul des fractions massiques et des densités atomiques pour une valeur de  $V_{UO_2} = 5\%$  et une porosité varie de 20% à 40% avec un pas de 5%.

### 3. Application de l'équation de diffusion à deux groupes pour un cœur cylindrique

L'étude de la criticité du ZR9 passe par le calcul du facteur de multiplication effective ( $k_{eff}$ ) à travers l'expression qu'on a déterminée dans le chapitre 2 (Eq.2.35). L'application de cette expression nécessite la connaissance de la forme de  $B^2$  qui dépend directement de la forme géométrique du système à étudier. Cela nous conduit à résoudre le système d'équation Eq.2.30 pour la forme cylindrique.

Fraction volumique (%)			$\rho_{\text{minerai}} (g / cm^3)$	$UO_2 (\rho = 10.6 g / cm^3)$		$H_2O (\rho = 0.9232 g / cm^3)$		$gangue (\rho = 2.659 g / cm^3)$			
La porosité ( $H_2O$ )	L'uraninite ( $UO_2$ )	La gangue		Fraction massique (g)	Pourcentage massique (%)	Fraction massique (g)	Pourcentage massique (%)	Fraction massique (g)	Pourcentage massique (%)	Fraction massique (g)	
										Argile	Quartz
20	5	75	2.708	0.530	19.571	0.184	6.794	1.994	73.633	0.199	1.794
25	5	70	2.622	0.530	20.213	0.230	8.771	1.861	70.976	0.186	1.674
30	5	65	2.535	0.530	20.907	0.276	10.887	1.728	68.179	0.173	1.555
35	5	60	2.448	0.530	21.650	0.323	13.194	1.595	65.155	0.159	1.435
40	5	55	2.361	0.530	22.448	0.369	15.628	1.462	61.922	0.146	1.315

Tableau 3.2 Fraction massique des composants du minerai pour différentes valeurs de porosité

### 3.1. Cas du milieu multiplicateur homogène de forme cylindrique sans réflecteurs

Dans le cas d'un réacteur nu sans réflecteur la solution générale du système d'équation *Eq.2.30* s'écrit sous la forme citée ci-dessous (*Eq.3.11*) où  $S_1$  est la constante de couplage (*bussac et Reuss, 1985; Reuss, 2003; Duderstadt et Hamilton, 1976*). Dans ce cas seulement la racine  $\mu^2$  est acceptée telle que  $B^2 = \mu^2$ .

$$\begin{cases} \Phi_1 = AX \\ \Phi_2 = S_1 AX \end{cases} \quad (Eq.3.11)$$

avec :

$$\Delta X + \mu^2 X = 0 \quad (Eq.3.12)$$

Pour un réacteur cylindrique uniforme de rayon  $R$  et d'épaisseur  $H$  comme le montre la figure.3.1, l'équation *Eq.3.12* est une équation différentielle partielle. Elle peut être exprimée en fonction des termes radial et axial  $(r, z)$  des coordonnées cylindriques tout en utilisant la forme cylindrique du laplacien  $\Delta$ . Elle peut être écrite sous la forme suivante :

$$\frac{d^2 X(r, z)}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dX(r, z)}{dr} + \frac{d^2 X(r, z)}{dz^2} + \mu^2 X(r, z) = 0 \quad (Eq.3.13)$$

En séparant la fonction  $X$  en un produit des fonctions de  $r$  et  $z$  tel que:  $X(r, z) = \psi(r)\chi(z)$  (*Weinberg et al, 1958*) l'équation différentielle précédente s'écrit sous la forme :

$$\frac{1}{\psi(r)} \frac{d^2 \psi(r)}{dr^2} + \frac{1}{r\psi(r)} \frac{d\psi(r)}{dr} + \frac{1}{\chi(z)} \frac{d^2 \chi(z)}{dz^2} + \mu^2 = 0 \quad (Eq.3.14)$$

On remarque dans cette équation que le premier terme ne dépend que de  $r$ , et le deuxième dépend uniquement de  $z$ , donc les deux termes doivent être constants pour que l'équation puisse avoir une solution. Les constantes doivent satisfaire les équations différentielles suivantes :

$$\begin{cases} \frac{d^2 \psi}{d(\alpha r)^2} + \frac{1}{\alpha r} \frac{d\psi}{d(\alpha r)} + \psi = 0 \\ \frac{d^2 \chi}{dz^2} + \beta^2 \chi = 0 \end{cases} \quad (Eq.3.15)$$

$$\text{avec : } \begin{cases} \alpha^2 + \beta^2 = \mu^2 \\ \text{ou} \\ \alpha^2 + \beta^2 = B^2 \end{cases} \quad (\text{Eq.3.16})$$

Une telle équation différentielle pour la direction radiale est appelée l'équation de Bessel. Les solutions de ces deux équations différentielles sont respectivement :

$$\begin{cases} \psi(r) = C_1 j_0(\alpha r) + C_2 Y_0(\alpha r) \\ \chi(z) = A_1 \sin(\beta z) + A_2 \cos(\beta z) \end{cases} \quad (\text{Eq.3.17})$$

où  $j_0, Y_0$  sont les fonctions de Bessel d'ordre zéro de première et seconde espèce (*Courant et Hilbert, 1989*). Pour un ordre  $n$ , la fonction de Bessel  $j_n$  défini à l'origine est la solution de l'équation différentielle de Bessel :

$$\frac{d^2 y}{dx^2} + \frac{1}{x} \frac{dy}{dx} + \left(1 - \frac{n^2}{x^2}\right) y = 0 \quad (\text{Eq.3.18})$$

$Y_n$  qui est indéfini en 0 est la solution de l'équation différentielle modifiée de Bessel :

$$\frac{d^2 y}{dx^2} + \frac{1}{x} \frac{dy}{dx} - \left(1 + \frac{n^2}{x^2}\right) y = 0 \quad (\text{Eq.3.19})$$

Les allures générales des fonctions  $j_0, y_0$  et  $\cos(x)$  sont illustrées dans la figure.3.3.

Pour arriver à l'expression finale du flux et de  $B^2$ , il faut noter que le flux doit être fini, positif, présente les symétries du système géométrique et s'annule à l'infini. En appliquant ses conditions, on trouve :

- Puisque il y a une symétrie autour l'axe Z il faut avoir  $\chi\left(\frac{H}{2}\right) = \chi\left(-\frac{H}{2}\right)$ , cela nécessite que la constante  $A_1$  égal à zéro ( $\sin(\beta z) \neq \sin(-\beta z)$ )
- Le flux est fini à l'origine ( $r=0$ ) donc la constante  $C_2=0$  parce qu'on a  $\lim Y_0(\alpha r) = -\infty$  lorsque  $r$  s'étend vers 0.



- Le flux s'annule à  $r = R$  et  $z = \pm \frac{H}{2}$  cela implique que :  $j_0(\alpha R) = 0$  et  $\cos\left(\pm \frac{\pi}{2}\right) = 0$

on obtient ainsi  $\alpha = \frac{2.405}{R}$  et  $\beta = \frac{\pi}{H}$ .

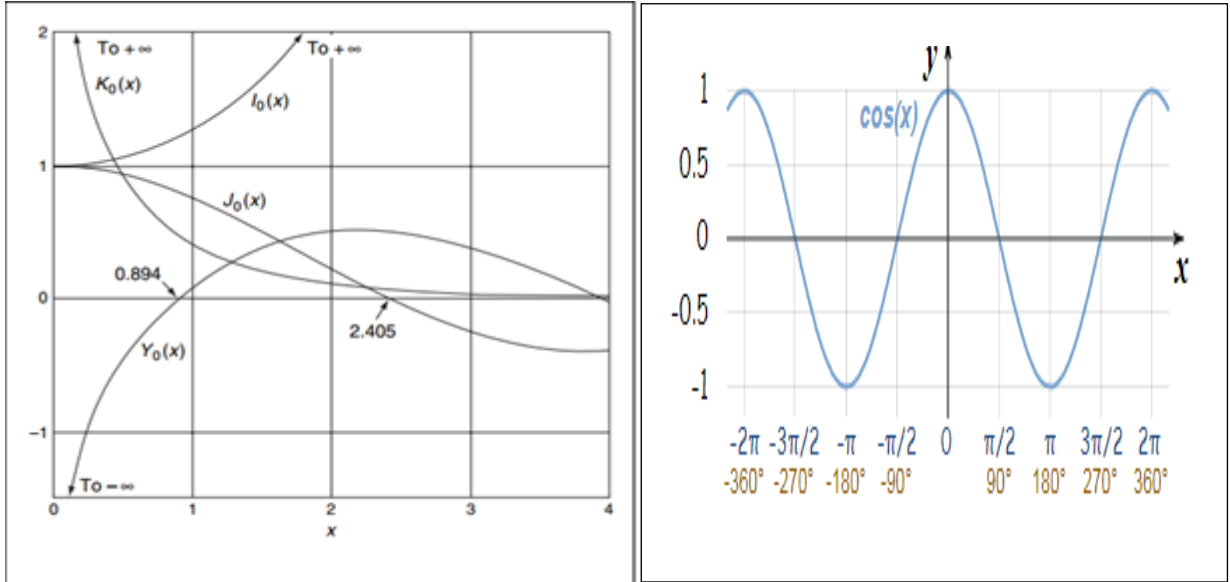


Figure 3.3 Allures générales des fonctions de Bessel et la fonction  $\cos(x)$

Finalement on aboutit à l'expression du flux neutronique dans le cas d'un cœur cylindrique sans réflecteurs qui s'écrit sous la forme :

$$\begin{cases} \Phi_1(r, z) = A j_0\left(\frac{2.405}{R} r\right) \cos\left(\frac{\pi}{H} z\right) \\ \Phi_2(r, z) = S_1 A j_0\left(\frac{2.405}{R} r\right) \cos\left(\frac{\pi}{H} z\right) \end{cases} \quad (Eq.3.20)$$

La constante  $A$  peut être définie à partir de la puissance du réacteur. La constante de couplage  $S_1$  peut être définie en suivant les étapes ci-dessous :

On a obtenue :

$$\Delta \Phi_2 + B^2 \Phi_2 = 0$$

De cette équation nous tirons :

$$\Delta \Phi_2 = -B^2 \Phi_2 = -\mu^2 \Phi_2 \quad (Eq.3.21)$$

On reporte cette équation dans la seconde des équations ( Eq.2.30 ) développées dans le chapitre 2 et on obtient :

$$\frac{\Phi_1}{\Phi_2} = \frac{D_2\mu^2 + \Sigma_0}{p\Sigma_r} \text{ avec } \frac{\Phi_1}{\Phi_2} = \frac{1}{S_1} \quad (\text{Eq.3.22})$$

On arrive finalement à obtenir l'expression de la constante  $S_1$  telle que :

$$S_1 = \frac{p\Sigma_r}{D_2\mu^2 + \Sigma_a} \quad (\text{Eq.3.23})$$

Ce qui nous intéresse beaucoup plus est l'expression de  $B^2$  qui s'écrit comme suit :

$$B^2 = \left( \frac{2.405}{R} \right)^2 + \left( \frac{\pi}{H} \right)^2 \quad (\text{Eq.3.24})$$

Par conséquent, il est maintenant possible de relier le facteur de multiplication effectif  $k_{eff}$  à quatre paramètres, à savoir : deux paramètres physiques qui sont la teneur en uranium et la porosité et deux autres paramètres géométriques qui sont l'épaisseur du cœur et son rayon. Dans ce travail, la criticité est étudiée en fonction de quatre paramètres :  $H, R, \Phi_T$  et  $V_{UO_2}$ , reliés par l'expression :

$$k_{eff} = \frac{k_{\infty}}{(1 + B^2 L_1^2)(1 + B^2 L_2^2)}$$

Des calculs de  $k_{eff}$  pour certaines configurations critiques du réacteur actif sont réalisés analytiquement et comparés avec ceux obtenus par les simulations de Monte Carlo dans le travail de Bentrud et *al.*

### 3.1.1. Méthode de calcul

#### a. Détermination du facteur de multiplication infini $k_{\infty}$

Pour calculer  $k_{\infty}$ , nous allons utiliser la formule des quatre facteurs citée dans le chapitre 1. Elle est applicable au cas des réacteurs à eau qui fonctionnent principalement sur la base des fissions induites par l'absorption de neutrons thermiques.

La composition et la géométrie du réacteur étant connues, on peut ainsi évaluer chacun des quatre facteurs de la formule de  $k_{\infty}$  (Weinberg et Wigner, 1958; Lamarsh et Baratta, 2001).

#### a.1. Facteur de fission rapide

Le facteur de fission rapide  $\varepsilon$  est le rapport du nombre total des neutrons émis par les fissions thermique et rapide au nombre des neutrons émis seulement par la fission thermique. C'est un facteur correctif qui permet de tenir compte du fait que des neutrons sont également émis suite à des fissions induites par la capture d'un neutron rapide (Lamarsh et Baratta, 2001; Stacey, 2007).

$$\varepsilon = \frac{N(\text{neutrons thermiques}) + N(\text{neutrons rapides})}{N(\text{neutrons thermiques})} \quad (\text{Eq.3.25})$$

Ainsi, si les fissions nucléaires sont supposées induites uniquement par les neutrons thermiques, le facteur de fission rapide est alors  $\varepsilon = 1$  parce qu'il n'y a pas des fissions rapides.

#### a.2. Le facteur d'utilisation thermique :

Le facteur d'utilisation thermique est défini comme la probabilité qu'un neutron qui est finalement absorbé dans le cœur, soit en fait absorbé dans le combustible. Ceci, à son tour, est égal au rapport entre le nombre de neutrons absorbés par seconde dans le combustible et le nombre total de neutrons absorbés par seconde dans le cœur. Il peut être calculé en utilisant la relation suivante : (Lamarsh et Baratta, 2001 ; Stacey, 2007)

$$f = \frac{\Sigma_a(\text{combustible})}{\Sigma_a(\text{total})} \quad (\text{Eq.3.26})$$

$\Sigma_a$  : est la section efficace macroscopique d'absorption.

#### a.3. Le facteur de reproduction :

Il représente le nombre de neutrons émis par neutron absorbé dans le combustible. On peut le calculer à partir de la relation suivante : (Lamarsh et Baratta, 2001; Weinberg et al, 1958)

$$\eta = \nu \frac{\Sigma_f(\text{combustible})}{\Sigma_a(\text{combustible})} \quad (\text{Eq.3.27})$$

$\nu$  est le nombre de neutrons émis par fission en moyenne,  $\Sigma_a$  et  $\Sigma_f$  sont respectivement les sections efficaces macroscopiques d'absorption et de fission du combustible.

#### a.4. Le facteur antitrappe

Il représente la probabilité pour qu'un neutron traverse, dans un processus de ralentissement sans fuite, toute la gamme des énergies de résonance sans être absorbé. Comme par exemple le cas lors des captures dans les résonances de l'U238. Il peut être exprimé approximativement par la formule suivante : (*Lamarsh et Baratta, 2001*)

$$p = \exp\left(-\frac{N_{U238} I_{eff}}{\xi_{average} \Sigma_{s,thermique}}\right) \quad (Eq.3.28)$$

avec  $N_{U238}$  est le nombre de noyaux d'uranium 238,  $I_{eff}$  est l'intégrale de résonance effective,  $\Sigma_{s,thermique}$  représente la section efficace macroscopique de diffusion thermique et  $\xi_{average}$  représente la moyenne d'énergie perdue par collision pour un composant. Ces grandeurs sont calculées en utilisant les relations suivantes :

$$\begin{cases} N_{U238} = \frac{N_A}{A} \times f_{U238} \\ I_{eff} = 3.9 \left( \frac{\Sigma_{s,thermique}}{N_{U238}} \right)^{0.415} \\ \Sigma_{s,thermique} = N \times \sigma_{s,thermique} \\ \xi_{average} = \frac{\sum_{i=1}^n (\xi \times \Sigma_{s,rapide})_i}{\Sigma_{s,rapide} (totale)} \end{cases}$$

$\Sigma_{s,rapide}$  est la section efficace macroscopique de diffusion rapide et  $\xi_i$  est la moyenne d'énergie perdue par collision pour un élément, elle est calculée en utilisant la relation ci-dessous avec  $A$  le nombre de masse.

$$\xi_i = \frac{2}{A + \frac{2}{3}}$$

a.5. Détermination des sections efficaces à la température d'Oklo :

Les sections efficaces varient avec la température des noyaux cibles (*Jonathan et Walsh, 2017*), donc une correction avec la température d'Oklo ( $T = 423^\circ K$ ) est nécessaire. Dans ce cas on utilise la relation : (*Lamarsh et Baratta, 2001*)

$$\sigma = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \sqrt{\frac{T_0}{T}} \sigma_0 \quad (Eq.3.29)$$

où  $\sigma$  est la section efficace microscopique à la température T et  $\sigma_0$  est la section efficace microscopique à la température ambiante  $T_0 = 293^\circ K$ . Les températures doivent être en Kelvin.

Les valeurs des différentes sections efficaces microscopiques à la température d'Oklo sont illustrées dans le tableau 3.3.

élément	$\sigma_a$ (barn)	$\sigma_s$ (thermique)(barn)	$\sigma_s$ (rapide)(barn)	$\sigma_f$ (barn)
$^{235}U$	504	10	10	429
$^{238}U$	1.99	8.30	8.30	
<i>O</i>	0.00014	4.20	3.75	
<i>H</i>	0.243	30	20.4	
<i>Si</i>	0.118	1.70	2.20	
<i>Al</i>	0.170	1.40	1.4	
<i>Mg</i>	0.0465	3.60	3.4	
<i>Fe</i>	1.93	11	11.4	
<i>Na</i>	0.391	4	3.1	
<i>K</i>	1.53	2.50	2.1	

Tableau 3.3 Sections efficaces microscopiques des éléments constituant le minerai à la température d'Oklo

**b. Détermination des longueurs de diffusion**

Les longueurs de diffusion rapide et thermique respectivement sont données dans le chapitre.2 (*Eq.2.36*) en fonction des coefficients de diffusion rapide et thermique donnés par la

relation citée ci-dessous (Lewis, 2008) avec  $\Sigma_{tr,rapide}$ ,  $\Sigma_{tr,thermique}$  sont respectivement les sections efficaces macroscopiques de transport rapide et thermique.

$$D_1 = \frac{1}{3\Sigma_{tr,rapide}} \quad (Eq.3.30)$$

$$D_2 = \frac{1}{3\Sigma_{tr,thermique}}$$

La longueur de diffusion thermique représente la distance parcourue par les neutrons thermiques avant d'être absorbés, alors que la longueur de diffusion rapide représente la distance parcourue par les neutrons rapides depuis le point où ils sont nés jusqu'au point où ils sont thermalisés. La définition de la longueur de diffusion thermique est simple en utilisant les sections efficaces de transport et d'absorption apparaissant dans l'équation (Eq.2.36) moyennées sur le spectre des neutrons thermiques. Cependant, la longueur de diffusion des neutrons rapides nécessite plus de prudence et un examen minutieux.

L'âge de Fermi est l'approximation la plus fréquemment utilisée pour déterminer la longueur de diffusion rapide (Lamarsh et baratta, 2001; Lewis, 2008). Il est défini comme :

$$\tau = \frac{1}{3\Sigma_{tr,rapide}^2 \xi_{average}} \ln \left( \frac{E_1}{E_{th}} \right) \quad (Eq.3.31.a)$$

$$L_1 = \sqrt{\tau} \quad (Eq.3.31.b)$$

Tel que  $E_1 = 2MeV$  est l'énergie des neutrons de fission et  $E_{th}$  l'énergie des neutrons thermiques à  $T = 423^\circ K$ . Pour calculer  $E_{th}$  on utilise la relation citée ci-dessous avec  $K$  est la constante de Boltzmann.

$$E_{th} = \frac{3}{2} KT \quad (Eq.3.32)$$

La section efficace macroscopique de transport est calculée comme suit :

$$\Sigma_{tr} = \Sigma_a + \Sigma_s (1 - \bar{\mu}) \approx \Sigma_s (1 - \bar{\mu}) \text{ puisque } \Sigma_a \ll \Sigma_s \quad (Eq.3.33)$$

$\bar{\mu}$  est la moyenne des cosinus des angles de diffusion telle que:  $\bar{\mu} = \overline{\cos(\theta)}_i \approx \frac{2}{3A}$  avec  $A$  le nombre de masse. Lorsque la diffusion est isotrope  $\bar{\mu} = 0$ , dans ce cas on obtient:  $\Sigma_{tr} = \Sigma_s$  (Duderstadt et Hamilton, 1976).

### c. Calcul du facteur de multiplication effectif

Afin de vérifier l'exactitude de la méthode suivie pour le calcul de  $k_{eff}$ , il nous reste à déterminer les quatre paramètres géométriques et physiques, à savoir : le rayon, l'épaisseur, la quantité d'uranium et la porosité. Pour cela, on va utiliser les mêmes valeurs utilisées dans la simulation Monte Carlo où l'épaisseur est fixée à  $H = 70cm$ ,  $V_{UO_2} = 5\%$  et la porosité varie de 25% à 40% avec un pas de 2.5%. Pour le rayon on utilise les valeurs critiques obtenues par Bentriddi (Bentriddi et al, 2011a). Les résultats obtenus sont illustrés dans le tableau 3.4.

### 3.2. Cas du milieu multiplicateur homogène de forme cylindrique avec réflecteurs

Dans ce cas, on cherche à résoudre l'équation de diffusion à deux groupes pour le cœur et les réflecteurs environnant. Les réflecteurs sont des milieux non multiplicateurs ( $\Sigma_f = 0$ ), donc les équations de diffusion s'écrivent : (bussac et Reuss, 1985; Cherot, 1959)

Cœur :

$$\begin{cases} D_{1c}\Delta\Phi_{1c}(\vec{r}) - \Sigma_{rc}\Phi_{1c}(\vec{r}) + \left(\frac{k_{\infty}\Sigma_a}{k_{eff}P}\right)_c \Phi_{2c}(\vec{r}) = 0 \\ D_{2c}\Delta\Phi_{2c}(\vec{r}) - \Sigma_{ac}\Phi_{2c}(\vec{r}) + p_c\Sigma_{rc}\Phi_{1c}(\vec{r}) = 0 \end{cases} \quad (Eq.3.34)$$

Réflecteur :

$$\begin{cases} D_{1r}\Delta\Phi_{1r} - \Sigma_{r,r}\Phi_{1r} = 0 \\ D_{2r}\Delta\Phi_{2r} - \Sigma_{ar}\Phi_{2r} + \Sigma_{r,r}\Phi_{1r} = 0 \end{cases} \quad (Eq.3.35)$$

#### 3.2.1. Solution des équations de diffusion dans le cœur

La solution générale de système d'équation dans le cœur est la même que celle développée dans le chapitre 2 ; il suffit juste de déterminer l'expression des fonctions  $X$  et  $Y$ . Dans ce cas, la racine  $\nu^2 n$  n'est pas négligeable comme dans le cas du cœur sans réflecteur.

Rappelons que l'on a trouvé que :  $X(r, z) = \psi(r)\chi(z)$ , Les expressions de  $\psi(r)$  et  $\chi(z)$  sont les mêmes que celles trouvées précédemment sauf que les conditions aux limites changent un peu en raison de la présence des réflecteurs qui empêche l'annulation du flux sur les côtés du cœur mais il doit être toujours régulier à l'origine et présente la symétrie du système.

Donc les constantes  $C_2$  et  $A_1$  doivent être nulles. On obtient dans ce cas :

$$X(r, z) = j_0(\alpha r) \cos(\beta z) \quad (Eq.3.36)$$

Pour trouver l'expression de la fonction  $Y$  il faut résoudre l'équation:  $\Delta Y - \nu^2 Y = 0$ .

En coordonnées cylindrique on obtient :

$$\frac{d^2 Y}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dY}{dr} + \frac{d^2 Y}{dz^2} - \nu^2 Y = 0 \quad (Eq.3.37)$$

On utilise la séparation de variable tel que  $Y(r, z) = \psi'(r)\chi'(z)$ , l'équation (Eq.3.37) s'écrit alors :

$$\frac{1}{\psi'} \frac{d^2 \psi'}{dr^2} + \frac{1}{r\psi'} \frac{d\psi'}{dr} + \frac{1}{\chi'} \frac{d^2 \chi'}{dz^2} - \nu^2 = 0 \quad (Eq.3.38)$$

Comme nous avons vu précédemment et en suivant les mêmes étapes on arrive à :

$$\begin{cases} \psi'(r) = C_1 I_0(\alpha r) + C_2 K_0(\alpha r) \\ \chi'(z) = A_1 \sin(\beta z) + A_2 \cos(\beta z) \end{cases} \quad (Eq.3.39 a)$$

avec :

$$\alpha^2 - \beta^2 = \nu^2 \quad (Eq.3.39 b)$$

$I_0$  et  $K_0$  sont les fonctions de Bessel modifiées de première et de second espèce d'ordre 0 (*Courant et Hilbert, 1989*).

Pour que le flux reste régulier à l'origine, la constante  $C_2$  doit être nulle puisque la fonction  $K_0$  est singulière à l'origine (Fig.3.3). De plus,  $A_1 = 0$  en raison de la symétrie. Donc l'expression



de la fonction  $Y$  est la suivante :

$$Y(r, z) = I_0(\alpha' r) \cos(\beta z) \quad (Eq.3.40)$$

La solution des équations de diffusion à deux groupes dans le cœur peut être représentée par :

$$\begin{cases} \Phi_{1c}(r, z) = \cos(\beta z) [A j_0(\alpha r) + C I_0(\alpha' r)] \\ \Phi_{2c}(r, z) = \cos(\beta z) [S_1 A j_0(\alpha r) + S_2 C I_0(\alpha' r)] \end{cases} \quad (Eq.3.41)$$

A et C sont des constantes.  $S_1$ ,  $S_2$  étant les coefficients de couplage définis par :

$$S_1 = \frac{p \frac{D_{1c}}{L_{1c}^2}}{D_{2c} \mu^2 + \Sigma_{ac}} \quad (Eq.3.42 a)$$

$$S_2 = \frac{p \frac{D_{1c}}{L_{1c}^2}}{\Sigma_{ac} - D_{2c} \nu^2} \quad (Eq.3.42 b)$$

Ils ont été déterminés en suivant les mêmes étapes précédentes comme dans le cas du cœur nu.

### 3.2.2. Solution des équations de diffusion dans le réflecteur

Pour le réflecteur le système d'équation (Eq.3.35) peut être écrit sous la forme suivante dans lequel on a divisé les deux équations par le coefficient de diffusion :

$$\begin{cases} \Delta \Phi_{1r} - \frac{1}{L_{1r}^2} \Phi_{1r} = 0 \\ \Delta \Phi_{2r} - \frac{1}{L_{2r}^2} \Phi_{2r} + \frac{\Sigma_{r,r}}{D_{2r}} \Phi_{1r} = 0 \end{cases} \quad (Eq.3.43)$$

$L_{1r}$  et  $L_{2r}$  sont respectivement les longueurs de diffusion rapide et thermique dans le réflecteur.

$$\begin{cases} L_{1r}^2 = \frac{D_{1r}}{\Sigma_{r,r}} \\ L_{2r}^2 = \frac{D_{2r}}{\Sigma_{ar}} \end{cases} \quad (Eq.3.44)$$

La solution générale de ce système d'équation est donnée comme suit :

$$\begin{cases} \Phi_{1r} = FZ(r, z) \\ \Phi_{2r} = S_3 FZ(r, z) + GW(r, z) \end{cases} \quad (Eq.3.45)$$

$S_3$  est la constante de couplage,  $F$  et  $G$  sont des constantes. Les fonctions  $Z$  et  $W$  satisfont respectivement les équations :

$$\begin{cases} \Delta Z - \frac{1}{L_{1r}^2} Z = 0 \\ \Delta W - \frac{1}{L_{2r}^2} W = 0 \end{cases} \quad (Eq.3.46)$$

Pour déterminer l'expression de la constante  $S_3$  on reporte la seconde équation du (Eq.3.45) dans la seconde équation du système (Eq.3.43) et en utilisant les expressions (Eq.3.46) on obtient :

$$S_3 = -\frac{\Sigma_{r,r} / D_{2r}}{\frac{1}{L_{1r}^2} - \frac{1}{L_{2r}^2}} \quad (Eq.3.47)$$

L'expression des fonctions  $Z(r, z)$  et  $W(r, z)$  dépend de la forme et de la position du réflecteur. Dans notre cas on va étudier séparément le réflecteur axial et le réflecteur latéral en cherchant l'expression des fonctions  $Z$  et  $W$ .

#### a. Le réflecteur latéral

Pour la géométrie cylindrique du réflecteur latéral on peut écrire :

$$\frac{d^2 Z}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dZ}{dr} + \frac{d^2 Z}{dz^2} - \frac{1}{L_{1r}^2} Z = 0 \quad (Eq.3.48)$$

Les variables sont séparables  $Z(r, z) = F(r)\varphi(z)$ , par substitution on trouve :

$$\frac{1}{F} \frac{d^2 F}{dr^2} + \frac{1}{rF} \frac{dF}{dr} + \frac{1}{\varphi} \frac{d^2 \varphi}{dz^2} - \frac{1}{L_{1r}^2} = 0 \quad (Eq.3.49)$$

La résolution de cette équation est la même que l'équation (Eq.3.14), on obtient :

$$\begin{cases} F(r) = C_{1r} I_0(\rho r) + C_{2r} K_0(\rho r) \\ \varphi(z) = A_{1r} \sin(\gamma z) + A_{2r} \cos(\gamma z) \\ \rho^2 - \gamma^2 = \frac{1}{L_{1r}^2} \end{cases} \quad (Eq.3.50)$$

Les conditions aux limites dans le réflecteur latéral sont :

$$\begin{aligned} F(R+d) &= 0 \\ \varphi\left(\frac{H}{2}\right) &= 0 \end{aligned}$$

On applique ces conditions et on arrive à l'expression de la fonction  $Z$  :

$$Z(r, z) = \left[ I_0(\rho r) - \frac{I_0(\rho(R+d))}{K_0(\rho(R+d))} K_0(\rho r) \right] \cos\left(\frac{\pi}{H} z\right) \quad (Eq.3.51 a)$$

avec

$$\gamma = \frac{\pi}{H}$$

De la même manière on trouve l'expression de la fonction  $W$  qui prend la forme :

$$W(r, z) = \left[ I_0(\rho' r) - \frac{I_0(\rho'(R+d))}{K_0(\rho'(R+d))} K_0(\rho' r) \right] \cos\left(\frac{\pi}{H} z\right) \quad (Eq.3.51 b)$$

Donc pour le réflecteur latéral l'expression des fonctions  $Z$  et  $W$  est maintenant connue avec la condition :

$$\begin{cases} \rho^2 - \left(\frac{\pi}{H}\right)^2 = \frac{1}{L_{1r(l)}^2} \\ \rho'^2 - \left(\frac{\pi}{H}\right)^2 = \frac{1}{L_{2r(l)}^2} \end{cases} \quad (Eq.3.52)$$

	Expression	$\Phi_T = 25\%$	$\Phi_T = 27.5\%$	$\Phi_T = 30\%$	$\Phi_T = 32.5\%$	$\Phi_T = 35\%$	$\Phi_T = 37.5\%$	$\Phi_T = 40\%$
Rayon (cm) (Bentridi et al, 2011a)	R	330	168	130	110	98	91	84
Facteur de fission rapide	$\varepsilon = 1$	1	1	1	1	1	1	1
Facteur d'utilisation thermique	$f = \frac{\Sigma_a(fuel)}{\Sigma_a(total)}$	0.707	0.701	0.695	0.689	0.683	0.678	0.672
Facteur antitrappe	$P = e^{-\left(\frac{N_{238} I_{eff}}{\xi_{avg} \Sigma_{sth}}\right)}$	0.870	0.878	0.885	0.891	0.896	0.900	0.905
facteur de reproduction	$\eta = \nu \frac{\Sigma_f(fuel)}{\Sigma_a(fuel)}$	2.070	2.070	2.070	2.070	2.070	2.070	2.070
Surface de diffusion rapide (cm <sup>2</sup> )	$L_1^2 = \frac{D_1}{\Sigma_F}$	81.78	75.84	70.66	66.11	62.07	58.47	55.22
Surface de diffusion thermique (cm <sup>2</sup> )	$L_2^2 = \frac{D_2}{\Sigma_a}$	26.80	25.80	24.90	24.00	23.10	22.40	21.60
Coefficient de diffusion rapide (cm)	$D_1 = \frac{1}{3\Sigma_{tr(rapide)}}$	0.99	0.98	0.96	0.94	0.92	0.90	0.89
Coefficient de diffusion thermique (cm)	$D_2 = \frac{1}{3\Sigma_{tr(thermique)}}$	0.84	0.81	0.79	0.77	0.75	0.73	0.71

Section efficace macroscopique d'absorption ( $\text{cm}^{-1}$ )	$\Sigma_a$	$3.12 \times 10^{-2}$	$3.15 \times 10^{-2}$	$3.17 \times 10^{-2}$	$3.20 \times 10^{-2}$	$3.23 \times 10^{-2}$	$3.25 \times 10^{-2}$	$3.28 \times 10^{-2}$
Section efficace macroscopique de transport thermique ( $\text{cm}^{-1}$ )	$\Sigma_{tr(\text{thermique})}$	0.40	0.41	0.42	0.43	0.45	0.46	0.47
Section efficace macroscopique de transport rapide ( $\text{cm}^{-1}$ )	$\Sigma_{tr(\text{rapide})}$	0.33	0.34	0.35	0.36	0.36	0.37	0.38
Facteur de multiplication effective	$k_{eff}$ (Eq.2.35)	1.029	1.028	1.028	1.029	1.030	1.025	1.026

Tableau 3.4 Quelques configurations critique de la zone de réaction ZR9 sans réflecteurs avec  $H = 70\text{cm}$  et  $V_{UO_2} = 5\%$

**b. Le réflecteur axial**

En appliquant les mêmes étapes que dans le réflecteur latéral avec les conditions aux limites

$F(R) = 0, \varphi\left(\frac{H}{2} + d\right) = 0$ , on arrive à l'expression des fonctions  $Z$  et  $W$  dans le réflecteur axial :

$$\begin{cases} Z(r, z) = j_0\left(\frac{2.405}{R}r\right)sh\left[\Omega\left(\frac{H}{2} + d - z\right)\right] \\ W(r, z) = j_0\left(\frac{2.405}{R}r\right)sh\left[\Omega\left(\frac{H}{2} + d - z\right)\right] \end{cases} \quad (Eq.3.53)$$

Avec la condition :

$$\Omega^2 - \left(\frac{2.405}{R}\right)^2 = \frac{1}{L_{1r(a)}^2} \quad (Eq.3.54 a)$$

$$\Omega^2 - \left(\frac{2.405}{R}\right)^2 = \frac{1}{L_{2r(a)}^2} \quad (Eq.3.54 b)$$

En résumé toutes les solutions qu'on a obtenues sont les suivantes :

Cœur :	$\begin{cases} X(r, z) = j_0(\alpha r)\cos(\beta z) \\ Y(r, z) = I_0(\alpha' r)\cos(\beta z) \end{cases}$
Réflecteur latéral :	$\begin{cases} Z(r, z) = \left[ I_0(\rho r) - \frac{I_0(\rho(R+d))}{K_0(\rho(R+d))} K_0(\rho r) \right] \cos\left(\frac{\pi}{H}z\right) \\ W(r, z) = \left[ I_0(\rho' r) - \frac{I_0(\rho'(R+d))}{K_0(\rho'(R+d))} K_0(\rho' r) \right] \cos\left(\frac{\pi}{H}z\right) \end{cases}$
Réflecteur axial :	$\begin{cases} Z(r, z) = j_0\left(\frac{2.405}{R}r\right)sh\left[\Omega\left(\frac{H}{2} + d - z\right)\right] \\ W(r, z) = j_0\left(\frac{2.405}{R}r\right)sh\left[\Omega\left(\frac{H}{2} + d - z\right)\right] \end{cases}$

tel que

$$\begin{cases} \Phi_{1c} = AX + CY \\ \Phi_{2c} = S_1AX + S_2CY \\ \Phi_{1r} = FZ \\ \Phi_{2r} = S_3FZ + GW \end{cases}$$

avec les conditions :

$$\begin{aligned} \alpha^2 + \beta^2 &= \mu^2 \\ \alpha'^2 - \beta'^2 &= \nu^2 \\ \rho^2 - \left(\frac{\pi}{H}\right)^2 &= \frac{1}{L_{1r(l)}^2} \\ \rho'^2 - \left(\frac{\pi}{H}\right)^2 &= \frac{1}{L_{2r(l)}^2} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \Omega^2 - \left(\frac{2.405}{R}\right)^2 &= \frac{1}{L_{1r(a)}^2} \\ \Omega'^2 - \left(\frac{2.405}{R}\right)^2 &= \frac{1}{L_{2r(a)}^2} \end{aligned}$$

### 3.2.3. La condition de continuité

La continuité des flux et des courants à l'interface entre le cœur du réacteur et le réflecteur peut s'écrire: (*Bussac et Reuss, 1985; Lamarsh et Baratta, 2001*)

$$\begin{aligned} \Phi_{1c} &= \Phi_{1r} \\ \Phi_{2c} &= \Phi_{2r} \\ -D_{1c} \nabla \Phi_{1c} &= -D_{1r} \nabla \Phi_{1r} \\ -D_{2c} \nabla \Phi_{2c} &= -D_{2r} \nabla \Phi_{2r} \end{aligned} \quad (Eq.3.55)$$

En substituant ces expressions dans (Eq.3.55) les équations (Eq.3.45) et (Eq.2.39), on obtient un système algébrique homogène de quatre équations pour quatre inconnues  $A$ ,  $C$ ,  $F$  et  $G$ .

$$\begin{aligned} AX + CY &= FZ \\ S_1AX + S_2CY &= S_3FZ + GW \\ D_{1c}A\dot{X} + D_{1c}C\dot{Y} &= D_{1r}F\dot{Z} \\ D_{2c}S_1A\dot{X} + D_{2c}S_2C\dot{Y} &= D_{2r}S_3F\dot{Z} + D_{2r}G\dot{W} \end{aligned} \quad (Eq.3.56)$$

Le point ( $\dot{\bullet}$ ) désigne la dérivée.

Ces équations peuvent être exprimées d'une manière matricielle de la façon suivante :

$$\begin{bmatrix} X & Y & -Z & 0 \\ S_1 X & S_2 Y & -S_3 Z & W \\ D_{1c} \dot{X} & D_{1c} \dot{Y} & -D_{1r} \dot{Z} & 0 \\ D_{2c} S_1 \dot{X} & D_{2c} S_2 \dot{Y} & -D_{2r} S_3 \dot{Z} & -D_{2r} \dot{W} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} A \\ C \\ F \\ G \end{bmatrix} = 0 \quad (Eq.3.57)$$

La seule solution non triviale de ce système d'équations linéaire nécessite que le déterminant soit nul:

$$\begin{vmatrix} X & Y & -Z & 0 \\ S_1 X & S_2 Y & -S_3 Z & W \\ D_{1c} \dot{X} & D_{1c} \dot{Y} & -D_{1r} \dot{Z} & 0 \\ D_{2c} S_1 \dot{X} & D_{2c} S_2 \dot{Y} & -D_{2r} S_3 \dot{Z} & -D_{2r} \dot{W} \end{vmatrix} = \Delta = 0 \quad (Eq.3.58)$$

Cette expression donne la condition critique pour un réacteur à réflecteurs par l'utilisation de la théorie de diffusion à deux groupes. Elle implique à la fois les dimensions du réacteur et sa composition chimique.

On peut évaluer cette condition critique et l'écrire d'une manière simple comme suit:

$$\Delta = a(c_1 + c_2 + c_3) - \rho_2 d c_1 - \rho_1 c c_2 - b c_3 = 0 \quad (Eq.3.59)$$

tel que:

$$a = \frac{\dot{X}}{X}, \quad b = \frac{\dot{Y}}{Y}, \quad c = \frac{\dot{Z}}{Z} \quad \text{et} \quad d = \frac{\dot{W}}{W}$$

$$c_1 = S_1(\rho_1 c - b), \quad c_2 = S_2(b - \rho_2 d) \quad \text{et} \quad c_3 = S_3 \rho_2 (d - c)$$

$$\rho_1 = \frac{D_{1r}}{D_{1c}} \quad \text{et} \quad \rho_2 = \frac{D_{2r}}{D_{2c}}$$



### 3.2.4. Evaluation de la condition critique pour un réacteur cylindrique à réflecteurs

Dans ce travail on va appliquer la condition de continuité séparément entre le cœur et le réflecteur latéral d'une part et le cœur et le réflecteur axial d'autre part. Cela nous conduit à résoudre les équations suivantes afin de déterminer  $k_{eff}$  avec la condition  $\alpha^2 + \beta^2 = \mu^2$ . Notons qu'on n'a pas pris en compte l'effet des coins.

$$\begin{aligned}\Delta(\alpha, k_{eff}) &= 0 \\ \Delta(\beta, k_{eff}) &= 0\end{aligned}\tag{Eq.3.60}$$

Les conditions de continuités pour les réflecteurs latéraux et axiaux nécessaires pour résoudre les équations (Eq.3.60) sont :

#### a. Condition de continuité entre le cœur et le réflecteur axial

$$\begin{aligned}\Phi_{1c}\left(r, \frac{H}{2}\right) &= \Phi_{1r}\left(r, \frac{H}{2}\right) \\ \Phi_{2c}\left(r, \frac{H}{2}\right) &= \Phi_{2r}\left(r, \frac{H}{2}\right) \\ D_{1c} \frac{d\Phi_{1c}\left(r, \frac{H}{2}\right)}{dz} &= D_{1r} \frac{d\Phi_{1r}\left(r, \frac{H}{2}\right)}{dz} \\ D_{2c} \frac{d\Phi_{2c}\left(r, \frac{H}{2}\right)}{dz} &= D_{2r} \frac{d\Phi_{2r}\left(r, \frac{H}{2}\right)}{dz}\end{aligned}\tag{Eq.3.61 a}$$

#### b. Condition de continuité entre le cœur et le réflecteur latéral

$$\begin{aligned}\Phi_{1c}(R, z) &= \Phi_{1r}(R, z) \\ \Phi_{2c}(R, z) &= \Phi_{2r}(R, z) \\ D_{1c} \frac{d\Phi_{1c}(R, z)}{dr} &= D_{1r} \frac{d\Phi_{1r}(R, z)}{dr} \\ D_{2c} \frac{d\Phi_{2c}(R, z)}{dr} &= D_{2r} \frac{d\Phi_{2r}(R, z)}{dr}\end{aligned}\tag{Eq.3.61 b}$$

Les fonctions  $\frac{\dot{X}}{X}$ ,  $\frac{\dot{Y}}{Y}$ ,  $\frac{\dot{Z}}{Z}$  et  $\frac{\dot{W}}{W}$  pour le réflecteur axial et le réflecteur latéral dans la géométrie cylindrique sont listées dans le tableau suivant :

	Réflecteur axial	Réflecteur latéral
$\frac{\dot{X}}{X}$	$-\beta \operatorname{tg}\left(\beta \frac{H}{2}\right)$	$-\alpha \frac{j_1(\alpha R)}{j_0(\alpha R)}$
$\frac{\dot{Y}}{Y}$	$-\beta \operatorname{tg}\left(\beta \frac{H}{2}\right)$	$\alpha' \frac{I_1(\alpha' R)}{I_0(\alpha' R)}$
$\frac{\dot{Z}}{Z}$	$-\Omega \operatorname{coth}(\Omega d)$	$\rho \left( \frac{I_1(\rho R) K_0(\rho(R+d)) + I_0(\rho(R+d)) K_0(\rho R)}{I_0(\rho R) K_0(\rho(R+d)) - I_0(\rho(R+d)) K_0(\rho R)} \right)$
$\frac{\dot{W}}{W}$	$-\Omega' \operatorname{coth}(\Omega' d)$	$\rho' \left( \frac{I_1(\rho' R) K_0(\rho'(R+d)) + I_0(\rho'(R+d)) K_0(\rho' R)}{I_0(\rho' R) K_0(\rho'(R+d)) - I_0(\rho'(R+d)) K_0(\rho' R)} \right)$

Tableau 3.5 Différente fonctions nécessaire pour les calculs d'un cœur réfléchi en géométrie cylindrique

### c. Définitions des réflecteurs

Après avoir déterminé les équations et les expressions qui nous permettent de définir  $k_{eff}$  et afin de trouver les valeurs critiques de rayon du cœur, son épaisseur, sa porosité et sa teneur en uranium qui conduisent à  $k_{eff} = 1$ , il nous reste à définir la composition chimique des réflecteurs entourant le cœur qui nous permet de calculer les longueurs de diffusion dans ces milieux.

Il est clair que les réflecteurs axiaux et latéraux n'ont pas exactement la même composition chimique parce que les réflecteurs axiaux représentent les couches sédimentaires qui se situent en bas et en haut du cœur et le réflecteur latéral représente l'environnement géologique qui entoure le cœur du réacteur. À la base des observations géologiques, on peut classer ces réflecteurs en deux types : conglomératique et gréseux. Le réflecteur conglomératique est caractérisé par la présence de minéraux lourds, de poison et de faible quantité d'uranium par rapport au cœur. Il est caractérisé aussi par une porosité de 15%. Pour le réflecteur gréseux, la porosité est seulement de 10% avec la présence d'une quantité de poison et d'uranium qui est minimale par rapport au réflecteur conglomératique (*Bentridi, 2012*).

Dans ce travail, les réflecteurs sont supposés des milieux non multiplicateurs (dépourvus d'uranium), sans poisons et de porosité de 10% pour les réflecteurs axiaux et 15% pour le réflecteur latéral. Les longueurs et les coefficients de diffusion sont calculés en suivant les

mêmes étapes comme dans le cœur sauf que  $\Sigma_f = 0$  donc  $k_\infty = 0$ . Les valeurs obtenues sont résumées dans le tableau 3.6.

	Réflecteur axial	Réflecteur latéral
$L_{1r}^2 (cm^2)$	157.182	121.156
$L_{2r}^2 (cm^2)$	188	159
$D_{1r} (cm^{-1})$	1.163	1.109
$D_{2r} (cm^{-1})$	1.037	0.965

Tableau 3.6 Valeurs des longueurs et des coefficients de diffusion pour le réflecteur latéral et axial

Dans les calculs des réacteurs nucléaires, la procédure de calcul à suivre habituellement consiste à spécifier la composition chimique du combustible et chercher la taille critique du réacteur. Un autre type de calcul est de déterminer la taille du réacteur et de chercher la masse du combustible qui conduit à  $k_{eff} = 1$  par l'utilisation de la condition critique qu'on a obtenue précédemment.

Concernant les réacteurs d'Oklo, la criticité est déterminée par la taille, la géométrie et la composition de la zone active qui contiennent l'uraninite, la gangue, l'eau et les poisons qui sont présents initialement ou s'accumulent pendant le fonctionnement. Dans notre travail la zone de réaction ZR9 est définie au moyen de quatre paramètres: H, R,  $\Phi_T$  et  $V_{UO_2}$ .

La plupart des études faites sur les réacteurs d'Oklo sont des études de nature paramétriques ; c'est-à-dire que les calculs sont faits de manière séquentielle en faisant varier un paramètre tout en maintenant les autres paramètres constants pour le premier calcul. On tire des conclusions qui vont induire un deuxième calcul et ainsi de suite. L'interprétation se fait en comparant le résultat du calcul effectué avec le calcul précédant afin d'étudier l'effet d'un paramètre sur la criticité. N'oublions pas que cette méthode a permis d'expliquer la criticité du ZR9 pour la première fois en se basant sur les simulations Monte Carlo (*Bentridi et al, 2011a ; 2011b*).

Si on veut étudier simultanément l'effet de ces paramètres ainsi que leurs interactions sur la criticité tout en minimisant le nombre de calculs, la méthode paramétrique est malheureusement inadéquate.

Le but de notre travail est de chercher la possibilité d'existence d'autres cas critiques non explorés par les méthodes paramétriques et qui n'ont pas été trouvés par les simulations Monte Carlo et qui conduisent au fonctionnement du réacteur. Pour cela on a fait recours à la méthode des plans d'expérience qu'on va développer dans le chapitre suivant.

---

## **Chapitre 4 : Introduction à la méthode des plans d'expériences**

---

### 1. Introduction

Le progrès de la science et de la technologie que nous connaissons aujourd'hui est lié à la volonté de comprendre les phénomènes naturels en répondant aux différentes questions posées sur la causalité des effets observés. Ces réponses étaient toujours basées sur des confrontations entre les observations et les résultats des expériences réalisées par l'homme afin de les reproduire et d'améliorer ses connaissances sur leurs causes.

L'étude d'un phénomène porte le plus souvent sur la détermination d'une grandeur physique particulière qui peut, à son tour, dépendre d'un grand nombre de paramètres. Il est ainsi essentiel de chercher à déterminer les paramètres susceptibles d'influer sur la grandeur d'intérêt, c'est-à-dire déterminer les paramètres qui ont une influence non négligeable sur la réponse du système qui présente la grandeur.

Lorsque les paramètres influents sont déterminés, il devient possible de quantifier leurs influences et de modéliser le comportement du système en fonction de ces paramètres. Il est aussi intéressant d'identifier les interactions des paramètres entre eux et de déterminer si ces interactions ont une influence significative sur la réponse. La détermination de l'influence de ces paramètres ainsi que de leurs interactions mutuelles exige des mesures expérimentales de toutes les configurations des valeurs possibles de ces paramètres. Cependant, lorsque le nombre de paramètres augmente, le nombre d'expériences augmente également et on peut se trouver dans des situations où l'exploration de toutes les configurations possibles des paramètres devient irréalisable. Devant cette situation, une question fondamentale s'impose toujours à l'expérimentateur : Existe-il une configuration minimale de paramètres qui permettrait de minimiser le plus possible le nombre des expériences tout en assurant une meilleure précision des résultats ? La réponse à cette question est donnée par la méthode des plans d'expériences qui nous permet de collecter, d'organiser, de présenter et d'étudier l'effet des paramètres sur une réponse tout en tirant le maximum d'informations.

Dans ce chapitre, nous nous proposons d'exposer les fondements de la méthode des plans d'expériences et de présenter les éléments nécessaires pour son utilisation pour la première fois à l'étude de la criticité de la zone de réaction d'Oklo « ZR9 » qui est l'objet du chapitre suivant.

## 2. La méthode des plans d'expériences

Les plans d'expériences (en anglais *Design Of Experiments* DOE) est une méthode de mathématique statistique qui permet de modéliser, d'optimiser et d'analyser simultanément l'effet des variables d'entrée, appelées facteurs, sur une variable de sortie appelée réponse. La méthode DOE est plus adaptée à l'examen des effets individuels et interactifs des divers facteurs qui peuvent influencer la réponse et offre un outil efficace pour la détermination des facteurs les plus importants grâce à une approche de criblage (*Goupy et Creighton, 2007; Linder, 2005*).

De plus, la méthode DOE a l'avantage de minimiser le nombre de tests pour obtenir plus d'informations avec moins d'expériences (ou simulations). Elle apporte un gain de temps par rapport à la méthode classique « une variable par étape » (one-variable-at-time) qui nécessite de réaliser un nombre considérable de tests en ne faisant varier qu'un seul paramètre à la fois. Si plusieurs paramètres doivent être étudiés, il faut répéter autant d'expériences que de paramètres (*Rodrigues et al, 2014; Karam, 2004*).

Imaginons que l'on a 4 paramètres à 4 niveaux ; cela nécessitera de réaliser  $(4)^4 = 256$  tests ce qui représente un travail souvent irréalisable. De plus, la décision d'arrêter ou de continuer les tests repose sur les résultats obtenus à chaque étape des expériences et n'obéit donc à aucune démarche objective. En revanche, la méthode DOE permet d'identifier les configurations des paramètres à prendre en compte et qui garantissent un résultat optimal sans avoir à étudier l'ensemble des configurations possibles.

La méthode DOE présente plusieurs avantages ; elle permet entre autre de:

- réduire le nombre de tests ce qui permet un gain en temps ;
- éviter de réaliser des tests inutiles ;
- d'étudier un grand nombre de facteurs ;
- identifier les facteurs les plus influents ;
- prendre en considération les interactions entre les facteurs ;
- modéliser les réponses étudiées.

La grandeur d'intérêt d'un système à étudier porte le nom de réponse et qui correspond au paramètre mesuré ou observé. Pour appliquer la méthode des plans d'expériences, la réponse est le plus souvent une grandeur de nature quantitative qui permet l'utilisation des méthodes

d'analyse statistique telles que l'analyse de variance ou de régression qui s'appuient sur des données quantitatives (*Linder, 2005; karam, 2004*).

La réponse quantitative peut être discrète de l'ensemble des entiers naturels comme elle peut être continue lorsqu'elle prend une infinité de valeurs ; elle appartient à l'ensemble des nombres réels.

En seconde étape, il est nécessaire de définir les facteurs qui influent sur la réponse. Ils représentent les paramètres du système étudié dont la variation est susceptible de modifier la réponse. Pour les plans d'expériences, tout facteur doit pouvoir être modifié sans difficulté parce qu'il représente un paramètre réel accessible expérimentalement. Toutefois, on peut distinguer deux types de facteurs : les facteurs quantitatifs et les facteurs qualitatifs (*Tinsson, 2010*).

### **a. Les facteurs quantitatifs**

Un facteur quantitatif est un paramètre qui s'exprime à l'aide de valeurs numériques. Les valeurs que prend un facteur quantitatif peuvent être continues ou discrètes. Lorsque le facteur varie on dit qu'il change de niveau (ou modalité). Le nombre de niveaux et la valeur prise par chaque facteur à chacun des niveaux dépendent du choix du plan d'expérience.

### **b. Les facteurs qualitatifs**

Un facteur qualitatif est un facteur qui prend des modalités non numériques, comme les couleurs par exemple, ou des nombres qui n'ont aucune importance numérique mais qui jouent beaucoup plus des fonctions de repère. Comme exemple, on peut citer les facteurs ordonnables qu'on peut mettre dans un ordre logique comme par première, deuxième et troisième, et des facteurs booléens qui ne peuvent prendre que deux modalités, par exemple haut et bas.

Des facteurs quantitatifs peuvent être transformés en facteurs qualitatifs : par exemple les valeurs continues de la vitesse peuvent être transformées en facteurs qualitatifs comme rapide et lent. De même on peut transformer des facteurs qualitatifs en facteurs quantitatifs. Le changement de types de facteurs est un moyen d'adapter la réponse à l'objectif de l'étude.

### **c. Les facteurs contrôlés et non contrôlés**



Les facteurs agissant sur la réponse du système sont plus ou moins nombreux selon la nature du système. Ces facteurs doivent être obligatoirement contrôlables, cela signifie que les facteurs non contrôlés sont ceux qui sont inconnus de l'expérimentateur ou bien ceux dont l'influence sur la réponse du système est négligeable.

#### d. Domaine d'un facteur

Les variations en valeur d'un facteur sont en général limitées entre deux bornes qui sont la borne inférieure (niveau bas) et la borne supérieures (niveau haut). L'ensemble de toutes les valeurs que peut prendre le facteur entre ces deux bornes s'appelle *domaine du facteur*, c'est la plage de variation autorisée pour le facteur. D'habitude, on procède à normaliser le domaine et d'indiquer les niveaux bas et haut par -1 et +1 respectivement pour que la représentation soit commune pour tous les facteurs.

#### 2.1. Domaine d'étude

C'est un domaine qui est défini par les niveaux haut et bas de chaque facteur, les points qui se trouvent à l'intérieur de ce domaine sont les points d'expériences parce qu'ils représentent la traduction mathématique, par leurs coordonnées, des combinaisons de valeurs des facteurs.

On peut avoir un domaine d'étude avec contraintes qui peuvent être dues à des expériences impossible à réaliser. La figure ci-dessous représente un domaine d'étude avec et sans contraintes pour deux facteurs (*Goupy, 2007*).

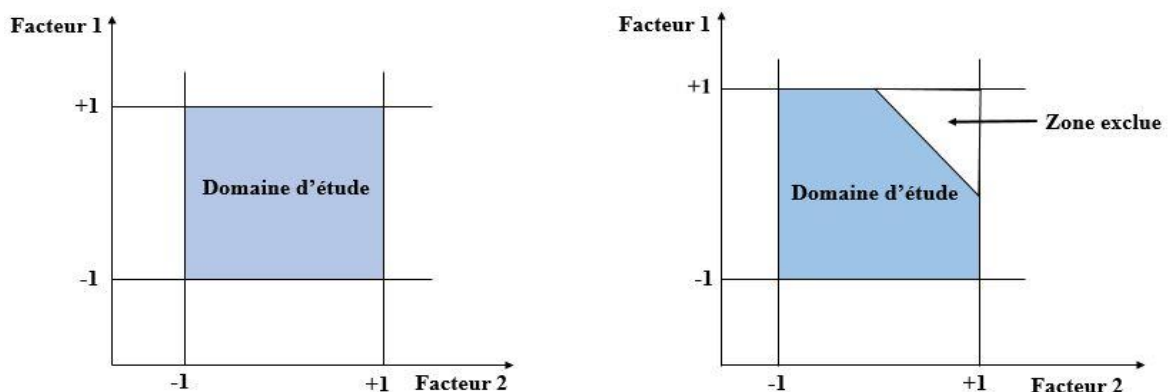


Figure 4.1 Représentation du domaine d'étude pour deux facteurs

## 2.2. Codage des paramètres

Les paramètres d'un système à étudier sont le plus souvent des grandeurs différentes et pour qu'on puisse présenter les plans d'expérience de la même manière quel que soit la nature des facteurs et leurs domaines de variation, il est conseillé de standardiser les variations de ces paramètres en introduisant de nouvelles variables appelées variables centrées réduites. Pour cela on utilise une relation de codage qui permet le passage des variables d'origine  $x_i$  à des variables codées  $X_i$ , et qui est donnée par la relation suivante : (Gillon, 1997)

$$X_i = \frac{x_i - x_0}{pas} \quad (Eq.4.1)$$

Le *pas* est égal à la moitié de la différence entre le niveau haut et le niveau bas :

$$pas = \frac{x_{+1,i} - x_{-1,i}}{2} \quad (Eq.4.2)$$

La valeur centrale entre le niveau haut et le niveau bas ( $x_0$ ) est égal à la moitié de la somme de niveau haut et niveau bas :

$$x_0 = \frac{x_{+1,i} + x_{-1,i}}{2} \quad (Eq.4.3)$$

Les variables centrées réduites  $X_i$  sont donc sans dimensions.

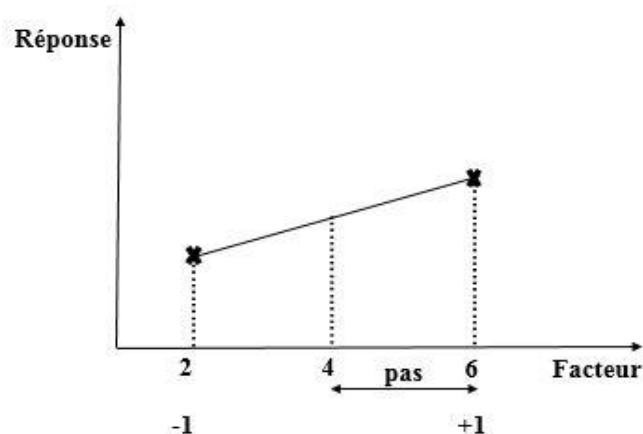


Figure 4.2 Présentation des variables codées

### 2.3. Choix du plan d'expérience

Le choix du plan d'expériences à mettre en œuvre dépend du problème à étudier. On peut citer les plans factoriels complets et fractionnaires, les plans à surface de réponse, les plans de mélange, les plans optimaux et carré latin (*Goupy, 2007*). Dans ce travail seul deux plans seront utilisés : le plan factoriel et le plan à surface de réponse.

Le plan factoriel nous permet de déterminer parmi tous les facteurs proposés ceux qui ont une influence non négligeable sur la réponse. Il s'agit d'identifier tous les facteurs susceptibles d'avoir un effet puis les tester afin d'en déterminer les facteurs qui provoquent des variations significatives sur la réponse. Cette méthode est appelée criblage des facteurs et le plan peut être nommé plan de criblage. Il est aussi possible d'identifier les interactions de facteurs ayant aussi une influence significative sur la réponse. Ce type de plan nous permet de répondre à la question « *pourquoi* la réponse varie-t-elle ? » (*Rabier, 2007*)

Le plan à surface de réponse a pour but de déterminer les variations de la réponse en fonction des facteurs et interactions jugés influents. L'utilisation de ce type de plan permet de répondre à la question « *comment* la réponse varie-t-elle ? » (*Rabier, 2007*)

### 2.4. Choix du modèle mathématique

Cette étape revient à choisir une forme de modèle mathématique adaptée aux objectifs de l'étude qui relie la réponse  $Y$  aux facteurs  $X_1, X_2, \dots, X_n$ . Ce modèle est de la forme générale :

$$Y = f(X_1, X_2, \dots, X_n) \quad (\text{Eq.4.4})$$

La forme du modèle dépend de ce que l'on souhaite établir comme relation entre la réponse et les facteurs. Si on veut estimer seulement les effets des facteurs, on adopte un modèle additif sans interactions de la forme:

$$Y = a_0 + a_1X_1 + a_2X_2 + \dots + a_nX_n \quad (\text{Eq.4.5})$$

Si on veut préciser l'effet des interactions entre facteur on adopte un modèle additif avec interactions :

$$Y = a_0 + a_1X_1 + a_2X_2 + \dots + a_nX_n + \sum_{i,j=1, i \neq j}^n a_{ij}X_iX_j + \sum_{i,j,k=1, i \neq j, j \neq k}^n a_{ijk}X_iX_jX_k + \dots \quad (\text{Eq.4.6})$$

Ces modèles visent à étudier les facteurs et non la réponse, on peut les nommer plans de criblage. Si on cherche les valeurs des niveaux des facteurs qui conduisent à une valeur maximale ou minimale de la réponse ou bien à une valeur cible de la réponse, on utilise un modèle du second degré :

$$Y = a_0 + \sum_{i=1}^n a_i X_i + \sum_{i=1}^n a_i X_i^2 + \sum_{i,j=1, i \neq j}^n a_{ij} X_i X_j + \dots \quad (Eq.4.7)$$

Ce modèle se différencie du modèle des plans de criblage par l'ajout de termes quadratiques. Ces modèles sont postulés à priori dans lesquels :

$Y$  est la réponse ;

$a_0$  une constante ;

$a_i$  les coefficient associés aux facteurs ;

$a_{ij}$  et  $a_{ijk}$  les coefficients associés aux termes d'interactions ;

$a_{ii}$  les coefficients des termes quadratiques ;

$X_i$  représente un niveau du facteur  $i$ .

Pour les plans de mélange, les modèles décrits précédemment ne peuvent pas décrire les variations de la réponse ; pour cela il est conseillé d'utiliser une forme canonique du second degré. Dans notre travail, nous avons considéré les plans de criblage et du second degré.

## 2.5. Analyse mathématique

Lorsqu'on réalise une expérience nous obtenons une valeur à la réponse  $Y$ . En réalisant toutes les expériences du plan on arrive à obtenir un système d'équations dont les coefficients du polynôme modélisateur sont les inconnus. La généralisation mathématique de l'étude des plans d'expériences nous permet d'écrire le système d'équations obtenu sous une forme matricielle : (Benoist, 1995)

$$Y = X.a + e \quad (Eq.4.8)$$

ou` :

$Y$  est le vecteur des réponses ;

$a$  est le vecteur des coefficients ;

$e$  est le vecteur des écarts ;

$X$  est appelée la matrice du modèle.

La matrice du modèle de  $N$  lignes et  $P$  colonnes, dépend du plan d'expérience choisi (liste des points expérimentaux) et du modèle mathématique postulé. Le nombre de colonnes correspond au nombre de coefficients à estimer dans le modèle et le nombre de lignes représente le nombre d'expériences.

L'analyse mathématique consiste à estimer les  $P$  coefficients ainsi que les  $N$  résidus à partir de la méthode des moindres carrés. Les estimations des coefficients du modèle sont données par la matrice  $\hat{a}$  telle que: (Tinsson, 2010; Rabier, 2007)

$$\hat{a} = (X'X)^{-1} X'Y \quad (\text{Eq.4.9})$$

$X'$  est la matrice transposée de la matrice  $X$ . Le produit matriciel  $(X'X)$  représente la matrice d'information et  $(X'X)^{-1}$  est la matrice de dispersion.

Pour déterminer les résidus on utilise la relation suivante :

$$e_i = Y_i - \hat{Y}_i \quad (\text{Eq.4.10})$$

où  $\hat{Y}$  est la réponse calculée et  $Y$  est la réponse mesurée.

### 3. Les plans factoriels

#### 3.1. Plan factoriel complet

Un plan factoriel complet est un plan pour lequel toutes les combinaisons possibles aux limites du domaine d'étude auront été réalisées (Montgomery, 2001).

Si on a  $k$  facteurs pouvant prendre chacun  $n_1, n_2, \dots, n_i$  niveaux différents, le nombre total  $N_{tot}$  de combinaisons est égal à :

$$N_{tot} = n_1^{k_1} \times n_2^{k_2} \times \dots \times n_i^{k_i} \quad (Eq.4.11)$$

avec  $k_1$  le nombre de facteurs ayant  $n_1$  niveaux,  $k_2$  le nombre de facteurs ayant  $n_2$  niveaux ...etc.

Lorsque tous les facteurs  $k$  ont le même nombre de niveaux ( $n$ ), le nombre total de combinaisons est égal à :

$$N_{tot} = n^k \quad (Eq.4.12)$$

Les plans factoriels à deux niveaux sont les plans les plus simples. Dans ce cas, le nombre total de combinaisons (expériences ou simulations à réaliser) se calcule par :

$$N_{tot} = 2^k \quad (Eq.4.13)$$

Par exemple, si on a 3 facteurs à 2 niveaux le plan factoriel comprendra  $2^3 = 8$  expériences à réaliser. Ces expériences peuvent être présentées de plusieurs manières dont la plus usuelle est sous la forme d'un tableau en utilisant les grandeurs habituelles ou bien codées.

Lorsqu'on utilise les grandeurs codées, le tableau prend dans ce cas le nom de matrice d'expériences. Elle sert à indiquer le nombre d'expériences à réaliser avec la façon de faire varier les facteurs et l'ordre dans lequel il faut réaliser les expériences. Le tableau 4.1 présente une matrice d'expérience pour 3 facteurs à 2 niveaux en utilisant la notation de YATE (*Collombier, 1996*) dans lequel les niveaux haut et bas de chaque facteur sont symbolisés par +1 et -1.

Essai n°	Facteur 1	Facteur 2	Facteur 3	Réponse
1	-1	-1	-1	$Y_1$
2	+1	-1	-1	$Y_2$
3	-1	+1	-1	$Y_3$
4	+1	+1	-1	$Y_4$
5	-1	-1	+1	$Y_5$
6	+1	-1	+1	$Y_6$
7	-1	+1	+1	$Y_7$

<b>8</b>	+1	+1	+1	$Y_8$
----------	----	----	----	-------

Tableau 4.1 Matrice d'expérience d'un plan factoriel pour 3 facteurs à 2 niveaux

Plus généralement, la matrice d'expériences comporte  $k$  colonnes et  $2^k$  lignes ; elle est construite en alternant les -1 et le +1 de toutes les lignes de la colonne du premier facteur, de toutes les deux lignes pour la colonne du deuxième facteur, de toutes les quatre lignes pour la colonne du troisième facteur et ainsi de suite pour un nombre plus élevé de facteurs. La première colonne de la matrice d'expérience indique le numéro de l'expérience.

Lorsque tous les facteurs ont le même nombre de niveaux, la matrice d'expérience est dite symétrique. Par contre, une matrice d'expérience asymétrique est obtenue quand les facteurs possèdent des niveaux différents.

A partir de la matrice d'expérience on peut déduire la matrice du modèle. Il suffit de construire un tableau qui contient les facteurs et leurs interactions. A titre d'exemple, en prenant le même plan factoriel précédent de 3 facteurs à 2 niveaux et en prenant en considération toutes les interactions entre les facteurs, on arrive à construire le tableau suivant :

<b>Essai n°</b>	<b>moyenne</b>	<b>Facteur1</b>	<b>Facteur2</b>	<b>Facteur3</b>	<b>Facteur1 × Facteur2</b>	<b>Facteur2 × Facteur3</b>	<b>Facteur1 × Facteur3</b>	<b>Facteur1 × Facteur2 × Facteur3</b>	<b>Réponse</b>
<b>1</b>	+1	-1	-1	-1	+1	+1	-1	-1	$Y_1$
<b>2</b>	+1	+1	-1	-1	-1	+1	-1	+1	$Y_2$
<b>3</b>	+1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	$Y_3$
<b>4</b>	+1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	-1	$Y_4$
<b>5</b>	+1	-1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	$Y_5$
<b>6</b>	+1	+1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	$Y_6$
<b>7</b>	+1	-1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	$Y_7$
<b>8</b>	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	$Y_8$

Tableau 4.2 Matrice d'expérience avec termes d'interactions

La matrice du modèle  $X$  correspondante est :

$$X = \begin{pmatrix} +1 & -1 & -1 & -1 & +1 & +1 & -1 & -1 \\ +1 & +1 & -1 & -1 & -1 & +1 & -1 & +1 \\ +1 & -1 & +1 & -1 & -1 & -1 & +1 & +1 \\ +1 & +1 & +1 & -1 & +1 & -1 & -1 & -1 \\ +1 & -1 & -1 & +1 & +1 & -1 & -1 & +1 \\ +1 & +1 & -1 & +1 & -1 & -1 & +1 & -1 \\ +1 & -1 & +1 & +1 & -1 & +1 & +1 & -1 \\ +1 & +1 & +1 & +1 & +1 & +1 & +1 & +1 \end{pmatrix}$$

Tableau 4.3 Matrice du modèle

### 3.2. L'orthogonalité

Le concept d'orthogonalité est important dans les plans d'expériences car il est lié à la notion d'indépendance. En effet, une matrice orthogonale signifie que les coefficients du modèle sont indépendants entre eux (*Linder, 2005*).

Par construction, tout plan factoriel complet est orthogonal. L'orthogonalité garantit que l'effet d'un facteur ou d'une interaction peut être estimé séparément de l'effet d'un autre facteur ou d'une autre interaction du modèle.

### 3.3. Plan factoriel fractionnaire

Le problème qu'on peut rencontrer dans les plans factoriels complets est le nombre très élevé des expériences qui augmente rapidement avec le nombre de facteurs. Il existe des études qui font intervenir 8 facteurs, ce que veut dire  $2^8 = 256$  essais à réaliser, un nombre qui semble déraisonnable. Dans de tels cas, on fait appel à un autre plan qui garde toujours le même principe primordial de la méthode des plans d'expérience tout en diminuant le nombre d'expériences. Ce plan est le plan factoriel fractionnaire. C'est un plan dans lequel on n'effectue qu'une fraction des essais du plan factoriel complet (*Goupy, 2007*).

Dans le cas de 4 facteurs ayant chacun 2 niveaux, nous devons réaliser un plan complet de 16 essais, un plan fractionnaire de fraction 1/2 ne requiert que la moitié de ces essais, c'est un plan  $2^{4-1}$  analogue au plan factoriel complet  $2^3 = 8$ . En général, le nombre d'essais à réaliser pour un plan fractionnaire à 2 niveaux et  $k$  facteurs est  $2^{k-q}$  tel que le  $q$  signifie que le nombre du plan complet a été divisé par  $2^q$  ( $q = 1, 2, \dots$ ).



### 3.3.1. Construction d'un plan fractionnaire

La construction d'un plan fractionnaire peut se faire à partir d'un plan factoriel complet  $2^k$  il suffit de suivre les étapes suivantes :

- On choisit un plant complet (matrice d'expérience) puis on écrit le plan de base correspondant (matrice du modèle) ;
- Dans le plan de base on affecte les facteurs supplémentaires aux colonnes des interactions, on dit que ces facteurs supplémentaires sont aliasés avec ces interactions ;
- On déduit le générateur d'alias qui sert à calculer la structure des alias qui décrit la confusion des plans factoriels fractionnaires ;
- on multiplie le générateur d'alias et on applique la relation d'équivalence.

On a vu que pour étudier 4 facteurs et en ne faisant que 8 essais on utilise un plan fractionnaire  $2^{4-1}$ . Pour le construire, on suit les étapes citées auparavant en commençant par le plant complet  $2^3$  (Tab.4.1) et le plan de base  $2^3$  (Tab.4.2).

Après avoir construit les plans complets et de base, on choisit une colonne parmi les quatre colonnes d'interactions pour lui affecter le facteur 4. Par exemple, on place le facteur 4 dans la colonne d'interaction 123 ; les niveaux d'étude du facteur 4 sont ainsi ceux de la colonne 123.

Dans ce cas la matrice d'expérience du plan fractionnaire  $2^{4-1}$  sera :

Essai n°	Facteur 1	Facteur 2	Facteur 3	Facteur 4
1	-1	-1	-1	-1
2	+1	-1	-1	+1
3	-1	+1	-1	+1
4	+1	+1	-1	-1
5	-1	-1	+1	+1
6	+1	-1	+1	-1
7	-1	+1	+1	-1
8	+1	+1	+1	+1

Tableau 4.4 Matrice d'expérience d'un plan factoriel fractionnaire  $2^{4-1}$

On écrit le générateur d'alias selon la notation de Box (*Goupy, 2007*), qui va nous permettre de trouver la structure des contrastes. D'une façon plus simple, on veut chercher quelles sont

les colonnes qui ont les mêmes signes. Un contraste est la somme algébrique des coefficients qui ont les mêmes colonnes de signes.

Le facteur 4 est étudié sur les signes de l'interaction 123, donc selon la notation de Box on peut écrire :

$$\mathbf{4} = \mathbf{123} \quad (\text{Eq.4.14})$$

Les chiffres sont écrits en gras (notation de Box) pour désigner la colonne de signe. La relation (Eq.4.14) veut dire que la colonne de signe du facteur 4 est la même que la colonne de signe de l'interaction 123. Pour trouver le générateur d'alias de ce plan fractionnaire, nous multiplions chaque membre de la relation (Eq.4.14) par **4**, et on obtient :

$$\mathbf{44} = \mathbf{1234} \Rightarrow \mathbf{I} = \mathbf{1234} \quad (\text{Eq.4.15})$$

$\mathbf{I} = \mathbf{1234}$  est le générateur d'alias, en le multipliant successivement par les colonnes **1**, **2**, **3** et **4**, on obtient les colonnes de même signe.

$\mathbf{1} \times \mathbf{I} = \mathbf{1} \times \mathbf{1234} \Rightarrow \mathbf{1} = \mathbf{234}$ , donc le coefficient  $a_1$  est aliasé avec le coefficient  $a_{234}$ . On continue de la même façon et on trouve :

$\mathbf{2} = \mathbf{134} \Rightarrow$  le coefficient  $a_2$  est aliasé avec le coefficient  $a_{134}$

$\mathbf{3} = \mathbf{124} \Rightarrow$  le coefficient  $a_3$  est aliasé avec le coefficient  $a_{124}$

$\mathbf{4} = \mathbf{123} \Rightarrow$  le coefficient  $a_4$  est aliasé avec le coefficient  $a_{123}$

$\mathbf{I} = \mathbf{1234} \Rightarrow$  le coefficient  $a_0$  est aliasé avec le coefficient  $a_{1234}$

On utilise la relation d'équivalence on obtient les contrastes :

$$l_1 = a_1 + a_{234}$$

$$l_2 = a_2 + a_{134}$$

$$l_3 = a_3 + a_{124}$$

$$l_4 = a_4 + a_{123}$$

$$l_0 = a_0 + a_{1234}$$

On peut déterminer aussi d'autres colonnes ayant les mêmes signes qui sont la colonne d'interaction  $a_{12}$  avec la colonne d'interaction  $a_{34}$ , la colonne  $a_{13}$  avec la colonne  $a_{24}$  et la colonne  $a_{14}$  avec la colonne  $a_{23}$ . Finalement, on arrive à écrire le modèle mathématique associé au plan fractionnaire  $2^{4-1}$  :

$$Y = (a_0 + a_{1234}) + (a_1 + a_{234})x_1 + (a_2 + a_{134})x_2 + (a_3 + a_{124})x_3 + (a_4 + a_{123})x_4 + (a_{12} + a_{34})x_1x_2 + (a_{13} + a_{24})x_1x_3 + (a_{14} + a_{23})x_1x_4 \quad (Eq.4.16)$$

La matrice du modèle associée est la suivante :

Essai n°	moyenne	1	2	3	4	12	13	14
1	1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	+1
2	1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	+1
3	1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1
4	1	+1	+1	-1	-1	+1	-1	-1
5	1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	-1
6	1	+1	-1	+1	-1	-1	+1	-1
7	1	-1	+1	+1	-1	-1	-1	+1
8	1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1

Tableau 4.5 Matrice du modèle d'un plan fractionnaire  $2^{4-1}$

D'après la matrice du modèle et le modèle mathématique postulé (Eq.4.16), on obtient un système de 8 groupes d'inconnus avec 8 équations au lieu de 16 inconnus avec 16 équations.

#### 4. Plans pour surfaces de réponse

Les plans d'expériences qu'on a présentés ont été destinés à l'estimation des effets des facteurs (le criblage de facteurs). Ils nécessitent que chaque facteur possède deux niveaux et le modèle mathématique utilisé est du premier degré avec ou sans interactions. Ils conduisent parfois à des modélisations simples et suffisantes mais ne permettent pas toujours de rendre compte correctement du problème étudié.

De plus, les problèmes qu'on peut rencontrer ne consistent pas uniquement à étudier l'effet des facteurs mais aussi à chercher par exemple un optimum dans un domaine d'étude. Pour cela on utilise des plans pour surfaces de réponse.

Un plan de surface de réponse est un ensemble de techniques de plan d'expériences qui nous permet de mieux comprendre la réponse. Il consiste à déterminer comment la réponse varie en fonction des facteurs d'influences significatives identifiés à l'aide de plans de criblage (*Goupy, 2005*).

Les plans pour surface de réponses permettent d'établir des modèles mathématiques du second degré. Pour trois facteurs avec interactions d'ordre 2, le modèle mathématique postulé s'écrit :

$$Y = a_0 + a_1x_1 + a_2x_2 + a_3x_3 + a_{12}x_1x_2 + a_{13}x_1x_3 + a_{23}x_2x_3 + a_{11}x_1^2 + a_{22}x_2^2 + a_{33}x_3^2 + e \quad (\text{Eq.4.17})$$

Les plans pour surface de réponses les plus efficaces sont (*Rabier, 2004*): les plans de Box-Behnken (*Box et al, 1960*), les plans de Doehlert (*Doehlert, 1970*) et les plans composites centrés.

#### **4.1. Plan de Box-Behnken**

Un plan de Box-Behnken est un type de plan de surface de réponse qui comporte moins de points et ne contient pas un plan factoriel. Il permet d'établir directement des modèles du second degré. Pour un plan de Box-Behnken, les facteurs ont seulement 3 niveaux : -1, 0, +1. Ce plan est utile lorsque les points axiaux du plan composite sont impossibles à réaliser ou se situent hors de la région à tester.

#### **4.2. Plan de Doehlert**

Dans le plan de Doehlert les points se répartissent de manière uniforme dans l'espace expérimental. Il permet d'obtenir un modèle de second degré analogue à celui du plan composite mais avec un minimum d'essais. Si on a par exemple 2 facteurs, il faut 9 essais à réaliser pour déterminer les coefficients du modèle avec un plan composite mais seulement 7 essais avec un plan de Doehlert.

#### **4.3. Plan composite centré**

Le plan composite centré est le plan de surface de réponse le plus utilisé. Il est particulièrement utile dans les études séquentielles qui reviennent à augmenter un plan factoriel de criblage en lui ajoutant des points axiaux et centraux. Les points axiaux sont appelés les points en étoile. Le schéma ci-dessous décrit les différents essais à réaliser pour obtenir une modélisation à partir d'un plan composite centré pour deux et trois facteurs.

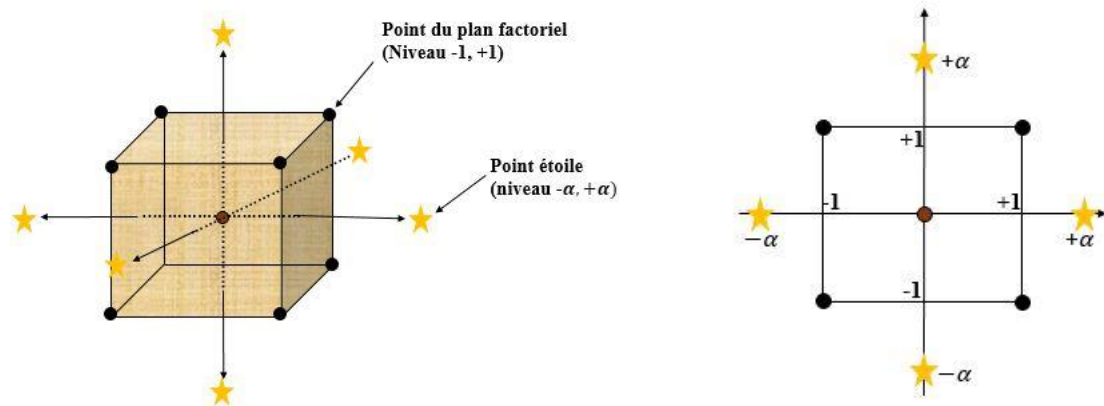


Figure 4.3 Plan composite centré à 2 et 3 facteurs

D'après ce schéma on peut déduire que le nombre de niveaux pour chacun des facteurs est 5 niveaux. On remarque également qu'un plan composite comporte trois parties qui sont :

- Un plan factoriel à deux niveaux par facteur (les points sont situés au sommet du domaine d'étude) ;
- Le plan en étoile (les points sont situés sur les axes de coordonnées à des distances égales du centre du domaine d'étude, cette distance est noté  $\alpha$ ) ;
- Les points au centre du domaine d'étude.

Dans ce cas, le nombre total  $N_{tot}$  d'essais à réaliser est donné par la relation suivante :

$$N_{tot} = N_f + N_\alpha + N_0 \quad (Eq.4.18)$$

avec :

$N_f$  est le nombre des essais du plan factoriel ;

$N_\alpha$  est le nombre des essais du plan en étoile ;

$N_0$  est le nombre des essais au centre du domaine d'étude.

#### 4.3.1. La position des points en étoile

Pour déterminer la position des points axiaux il faut calculer la valeur  $\alpha$  selon les critères d'iso-variance par rotation et/ou de presque-orthogonalité (Goupy, 2007; Tinsson, 2010).

- a. Iso-variance par rotation :** Une modélisation bénéficie d'une iso-variance par rotation si la variance de prédiction est constante en tous les points équidistants du centre du plan. Les plans composites centrés possèdent cette propriété. Si on choisit le critère d'iso-variance par rotation, la valeur de  $\alpha$  est égale à :

$$\alpha = (N_f)^{\frac{1}{4}} \quad (Eq.4.19)$$

- b. Presque orthogonalité :** il est impossible pour un modèle d'ordre deux d'obtenir un plan d'expérience orthogonal. Pour cela, on essaye de rapprocher le plus possible d'une situation orthogonale. Un plan composite centré sera presque orthogonal si nous choisissons la distance axiale  $\alpha$  telle que :

$$\alpha = \left( \frac{N_f \left( \sqrt{N_f + N_\alpha + N_0} - \sqrt{N_f} \right)^2}{4} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (Eq.4.20)$$

Dans ce cas la matrice de dispersion correspondante est presque orthogonale.

Le tableau ci-dessous présente quelques valeurs de  $\alpha$  en fonction du nombre de points de plan factoriel, du nombre de points du plan en étoile et du nombre de points au centre du domaine d'étude.

Nombre de facteurs	2	3	4
Plan	$2^2$	$2^3$	$2^4$
$N_f$	4	8	16
$N_\alpha$	4	6	8
$N_0 = 1$	<b>1</b>	<b>1.215</b>	<b>1.414</b>
$N_0 = 2$	<b>1.078</b>	<b>1.287</b>	<b>1.483</b>
$N_0 = 3$	<b>1.147</b>	<b>1.353</b>	<b>1.547</b>
$N_0 = 4$	<b>1.210</b>	<b>1.414</b>	<b>1.607</b>

Tableau 4.6 Quelques valeurs de  $\alpha$  selon le critère de presque-orthogonalité

Pour un plan composite centré simple à deux facteurs et deux points au centre du domaine d'étude, la matrice d'expérience est la suivante :

N° d'essai	Facteur 1	Facteur 2
1	-1	-1
2	+1	-1
3	-1	+1
4	+1	+1
5	-1.078	0
6	+1.078	0
7	0	-1.078
8	0	+1.078
9	0	0
10	0	0

Tableau 4.7 Plan composite centré à deux facteurs

La matrice du modèle n'est pas orthogonale mais le vecteur solution se calcule de la même manière que pour un plan factoriel en utilisant l'équation Eq.4.9.

#### 4.3.2. Plan composite à face centrée

Lorsque les points axiaux se trouvent au centre de chaque face de l'espace factoriel, on dit qu'on a un plan composite à face centrée. Dans ce cas,  $\alpha$  prend la valeur 1 et les facteurs ont seulement 3 niveaux au lieu de 5 niveaux. Dans ce travail, nous avons utilisé les plans composites centrés.

### 5. Analyse statistique

Une fois les résultats obtenus, il est nécessaire de vérifier l'équation du modèle mathématique en analysant les différents termes du modèle pour ne retenir que les termes significatifs. Pour cela, une analyse statistique basée sur l'analyse de la variance est nécessaire pour évaluer la qualité du modèle, sa validité et la *significativité* des coefficients.

La relation de base de la méthode de l'analyse de la variance (ANOVA ou ANalysis Of VAriance) sert à subdiviser la variation totale en une composante factorielle relative au modèle utilisé et une composante résiduelle : (Eriksson et al, 2000)

$$\sum_{i=1}^N (Y_i - \bar{Y})^2 = \sum_{i=1}^N (\hat{Y}_i - \bar{Y})^2 + \sum_{i=1}^N r_i^2 \quad (Eq.4.21)$$

## 5.1. Validation du modèle

### 5.1.1. Coefficient de détermination

Le coefficient de détermination  $R^2$  est une mesure de la qualité du modèle. Il représente le rapport de la somme des carrés des réponses calculées à la somme des carrés des réponses mesurées. Il est défini par :

$$R^2 = \frac{\sum_{i=1}^N (\hat{Y}_i - \bar{Y})^2}{\sum_{i=1}^N (Y_i - \bar{Y})^2} \quad (Eq.4.22)$$

$\hat{Y}_i$  et  $Y_i$  représentent respectivement les réponses calculées et mesurées en un point  $i$ .  $\bar{Y}$  est la valeur moyenne de la réponse. Le numérateur de l'équation Eq.4.22 représente la variation due à la régression et le dénominateur représente la variation totale.

Plus  $R^2$  est proche de 1, plus le modèle est représentatif. Si  $R^2 = 0$  le modèle n'a pas de puissance d'explication.

Si le nombre d'expérience est plus grand que le nombre de coefficients dans le modèle postulé, on utilise le coefficient de détermination ajusté ( $R_a^2$ ) tel que :

$$R_a^2 = 1 - \frac{N-1}{N-p} (1 - R^2) \quad (Eq.4.23)$$

avec  $N$  le nombre d'essais et  $p$  le nombre de coefficients.

### 5.1.2. Test de Fisher (F)

Le test de Fisher est un test de signification globale de la régression qui nous permet de savoir si le modèle apporte une donnée supplémentaire, si la régression est significative et si l'équation du modèle établit bien la relation entre la variation des facteurs et de la réponse. Il existe de nombreux logiciels et tableurs qui nous permettent de faire un test de Fisher de façon plus simple et plus rapide que le calcul manuel. Dans les deux cas, on arrive à construire un tableau appelé tableau d'analyse de la variance qui récapitule les différents calculs et notations de ce test.



Source des variations	Somme des carrés	ddl	Carré moyen	Test F
Modèle corrigé de la moyenne	SCM	p-1	SCM/p-1	F
Résidus	SCRES	N-p	SCRES/N-p	Prob F
Réponses mesurées corrigées de la moyenne	SCT	N-1		

Tableau 4.8 Analyse de la variance

où le test F est le rapport du carré moyen du modèle à celui des résidus (Eq.4.24). Il permet de tester l'égalité et le rapport entre deux variances.

$$F = \frac{SCM / (p-1)}{SCRES / (N-1)} \quad (Eq.4.24)$$

## 5.2. Vérification de la signification des coefficients

Pour faciliter la présentation de l'importance des coefficients du modèle, on procède à présenter chaque coefficient avec son écart-type, t de student et la p-value.

- a. Ecart-type : est calculé en utilisant la relation suivante

$$\sigma_{a_i} = \sqrt{V(a_i)} = \sqrt{\frac{1}{N} V(r_i)} \quad (Eq.4.25)$$

La variance des résidus  $V(r_i)$  nous permet de calculer la variance des coefficients  $V(a_i)$  qui sert d'étalon pour tester si un coefficient est significatif ou non.

- b. t de student : est le rapport entre la valeur du coefficient et son écart-type.

$$t_i = \frac{|a_i|}{\sigma_{a_i}} \quad (Eq.4.26)$$

- c. p-value : est la probabilité qu'un coefficient soit négligeable. Si on a par exemple la p-value égal à 0.85, on dit que le coefficient qui a cette valeur de p-value a une forte chance d'être égal à 0 c'est-à-dire il n'est pas significatif et on peut l'éliminer du modèle mathématique.

## 6. Analyse graphique

L'analyse graphique des résultats d'essais permet une restitution plus visuelle des résultats

d'essais et de leur analyse. Les graphiques que nous obtenons permettent de tirer plus rapidement des conclusions et de répondre aux différentes questions posées.

### **6.1. Diagramme des effets**

C'est un graphe obtenu par des traits qui relient les variations de la réponse en fonction des niveaux des facteurs comme représenté dans la figure (Fig.4.4) (Goupy *et al*, 2007). Il nous permet de juger le signe et l'amplitude des effets des facteurs. On peut aussi tracer un diagramme qui présente l'effet des interactions appelé diagramme des interactions.

### **6.2. Diagramme des coefficients**

C'est un diagramme qui sert à représenter les estimations des coefficients du modèle polynomial dans lequel l'axe horizontal indique les différents termes du modèle polynomial et l'axe vertical indique la valeur des estimations des coefficients.

### **6.3. Graphe d'adéquation du modèle**

La construction de ce graphe aboutit à un nuage de points qui représente la variation de la réponse mesurée en fonction de la variation de la réponse calculée à partir du modèle mathématique obtenu. Si le nuage de points est plus proche de la bissectrice on dit que le modèle mathématique décrit bien la réponse.

### **6.4. Surface de réponse**

Le diagramme de surface de réponse représente la surface de régression à partir d'un graphique dans un espace à trois dimensions où les facteurs sont représentés sur les axes des X et des Y, et la réponse (Z) par une surface lisse. Au-delà de deux facteurs, les autres facteurs sont fixés à un niveau constant.

### **6.5. Les courbes d'iso-réponse**

Il s'agit de la projection de la surface de réponse sur le plan horizontal. Ces courbes s'apparentent à des courbes de niveau, ils permettent une visualisation plus simple et plus claire de la surface de réponse.

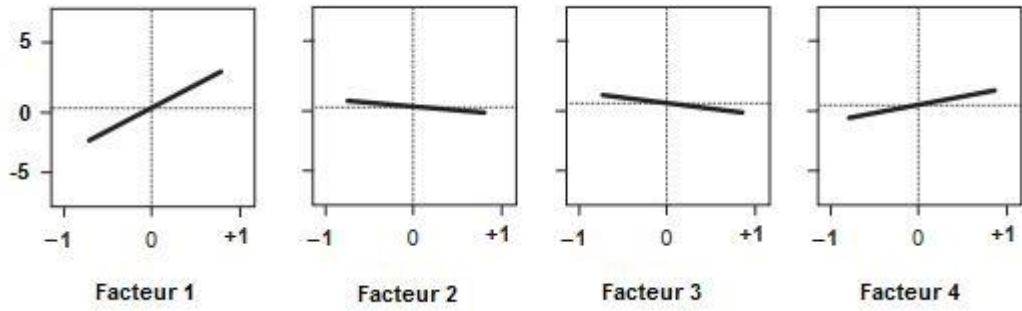


Figure 4.4 Exemple de diagramme des effets pour quatre facteurs

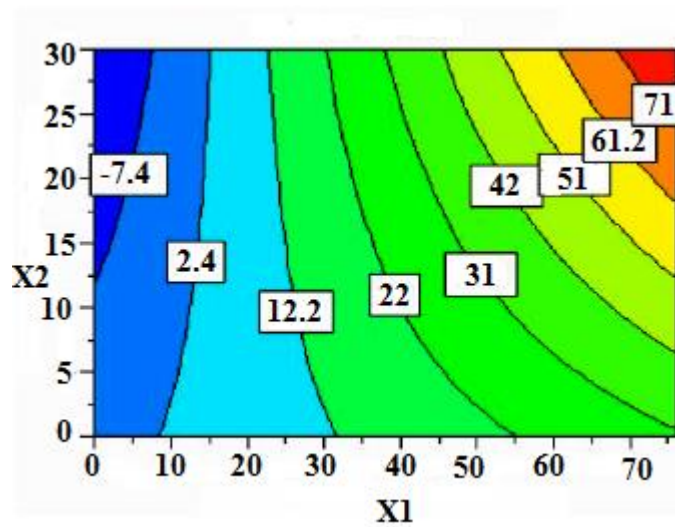


Figure 4.5 Exemple de courbe d'iso-réponse

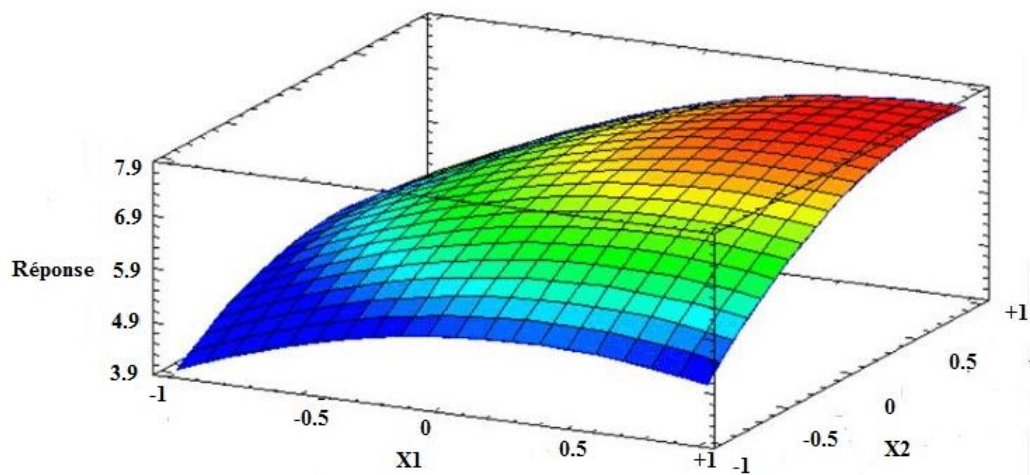


Figure 4.6 Exemple de surface de réponse

## **7. Validation du modèle**

Afin de capitaliser les résultats et les conclusions du plan d'expériences, il est nécessaire de réaliser des essais complémentaires qui n'ont pas été faits dans le plan d'expériences. La réponse trouvée doit correspondre à celle qui est prévue par l'équation du modèle. Dans le cas contraire, le modèle proposé ne peut être accepté.

---

**Chapitre 5 : Application de la méthode des plans  
d'expériences à l'étude de la criticité de ZR9  
d'Oklo**

---

## 1. Introduction

Nous avons présenté de manière théorique dans le chapitre précédent les différentes articulations méthodologiques des plans d'expérience. Le but du présent chapitre est d'appliquer cette méthode à l'étude de la criticité de la zone de réaction n°9 à Oklo afin d'obtenir un ensemble optimal de paramètres que nous avons abordés dans le troisième chapitre, en occurrence : l'épaisseur du réacteur, son rayon, sa porosité et sa teneur en uranium conduisant à  $k_{eff} = 1$ . L'effet de ces différents paramètres sur la criticité sera étudié ainsi qu'une surface de réponse sur le domaine d'étude sera établie dont l'objectif est de chercher s'il y a d'autres conditions critiques qui conduisent au fonctionnement de ZR9 en mode critique.

## 2. Application d'un plan factoriel complet à deux niveaux

### 2.1. Formalisation du problème

#### 2.1.1. Définition de l'objectif

L'objectif de cette première étape est d'estimer l'effet des paramètres précédemment définis dans le chapitre 4, sur la criticité du réacteur nucléaire naturel ZR9 ainsi que les interactions qui n'ont pas été prises en considération dans les travaux ayant un lien avec les réacteurs d'Oklo et aussi éliminer celles qui n'ont pas une influence sur la criticité.

#### 2.1.2. Définition de la réponse

L'étude neutronique développée dans le troisième chapitre nous a amené à définir le facteur de multiplication effectif à travers duquel l'état critique du réacteur nucléaire est étudié. Tout naturellement, la réponse dans ce travail sera le facteur de multiplication effectif  $k_{eff}$ .

#### 2.1.3. Définition des facteurs

Selon les différents travaux effectués sur les réacteurs d'Oklo basés sur l'étude neutronique et compte tenu du contexte géologique d'Oklo, ils existent plusieurs paramètres qui influent sur la criticité dont au moins quatre paramètres ont un impact direct sur la criticité d'un tel système nucléaire:

➤ **Facteur 1** : l'épaisseur du réacteur ( $H$ )

Il est évident que l'épaisseur du réacteur initial était plus grande que l'épaisseur finale en raison des effets de compactage induits par le quartz quittant le cœur du réacteur

pendant son fonctionnement. A travers les travaux de Bentriddi *et al* (2011), l'épaisseur du réacteur initial a été fixée à 70 cm suite à une série de simulation appliquée sur une configuration cylindrique simple dans laquelle l'intervalle de variation de ce paramètre géométrique est pris de 60 cm à 100 cm. Dans cette étude, nous avons choisi de considérer le même domaine de variation de ce paramètre géométrique.

➤ **Facteur 2** : le rayon du réacteur ( $R$ )

Les réacteurs d'Oklo sont tous étendus dans la dimension radiale ce qui signifie qu'on va traiter des valeurs de rayons qui seront plus grandes que l'épaisseur. Le domaine de variation du rayon sera choisi de la même manière que l'épaisseur.

➤ **Facteur 3** : la porosité ( $\Phi_r$ )

Les pores sont remplis d'eau sous les conditions de pression et de température estimées à l'époque des fonctionnements des réactions nucléaires naturels. Le domaine de variation de la porosité est le même que celui utilisé dans les simulations de Bentriddi *et al*.

➤ **Facteur 4** : la teneur en uranium ( $V_{UO_2}$ )

Ce paramètre est pris aussi comme une variable qui a son domaine de variation.

Les autres paramètres ayant une influence sur la criticité sont la présence de poisons neutroniques dans le cœur et dans les réflecteurs ainsi que la présence d'une quantité d'uranium dans les réflecteurs à des proportions différentes de celles du cœur. Ces paramètres ne seront pas pris en considération dans ce travail en raison de contraintes théoriques de l'étude analytique actuelle.

#### 2.1.4. Définition du domaine d'étude

Les facteurs et leurs domaines de variation sont présentés dans le tableau suivant :

Variables réelles	Variables centrées réduites	Niveau bas	Niveau moyen	Niveau haut
		-1	0	+1
L'épaisseur (cm)	$X_1$	50	75	100

<b>Le rayon (cm)</b>	$X_2$	40	120	200
<b>La porosité (%)</b>	$X_3$	20	30	40
<b>Le teneur en uranium (%)</b>	$X_4$	4	5.5	7

Tableau 5.1 Facteurs et domaine d'étude

## 2.2. Construction du plan d'expérience

Notre plan factoriel est constitué de 4 facteurs à deux niveaux. Selon la relation (Eq.4.13) le plan comporte 16 ( $2^4$ ) essais à réaliser. La matrice d'expérience qui nous permet de réaliser ces essais est ainsi bien définie.

Essai n°	Variables codées				Variables réelles			
	$X_1$	$X_2$	$X_3$	$X_4$	$H(m)$	$R(m)$	$\Phi_T(\%)$	$V_{UO_2}(\%)$
<b>1</b>	-1	-1	-1	-1	50	40	20	4
<b>2</b>	+1	-1	-1	-1	100	40	20	4
<b>3</b>	-1	+1	-1	-1	50	200	20	4
<b>4</b>	+1	+1	-1	-1	100	200	20	4
<b>5</b>	-1	-1	+1	-1	50	40	40	4
<b>6</b>	+1	-1	+1	-1	100	40	40	4
<b>7</b>	-1	+1	+1	-1	50	200	40	4
<b>8</b>	+1	+1	+1	-1	100	200	40	4
<b>9</b>	-1	-1	-1	+1	50	40	20	7
<b>10</b>	+1	-1	-1	+1	100	40	20	7
<b>11</b>	-1	+1	-1	+1	50	200	20	7
<b>12</b>	+1	+1	-1	+1	100	200	20	7
<b>13</b>	-1	-1	+1	+1	50	40	40	7
<b>14</b>	+1	-1	+1	+1	100	40	40	7
<b>15</b>	-1	+1	+1	+1	50	200	40	7
<b>16</b>	+1	+1	+1	+1	100	200	40	7

Tableau 5.2 Matrice d'expérience du plan factoriel complet  $2^4$

La représentation de ce plan suit l'ordre de Yate. Le codage des variables réelles se fait à l'aide de la relation de codage (Eq.4.1).

## 2.3. Définition du modèle mathématique



Nous avons vu dans le chapitre précédent que le choix du modèle mathématique se fait selon l'objectif de l'étude et puisque notre but dans cette première étape de l'étude est le criblage des facteurs et leurs interactions, donc le modèle additif avec interaction semble le plus approprié.

Le modèle mathématique postulé s'écrit dans ce cas sous la forme suivante :

$$\begin{aligned}
 Y = & a_0 + a_1X_1 + a_2X_2 + a_3X_3 + a_4X_4 + a_{12}X_1X_2 + a_{13}X_1X_3 + a_{14}X_1X_4 \\
 & + a_{23}X_2X_3 + a_{24}X_2X_4 + a_{34}X_3X_4 + a_{123}X_1X_2X_3 + a_{124}X_1X_2X_4 \\
 & + a_{134}X_1X_3X_4 + a_{234}X_2X_3X_4 + a_{1234}X_1X_2X_3X_4
 \end{aligned}
 \tag{Eq.5.1}$$

On remarque que ce modèle possède 16 coefficients, soit 16 inconnues à déterminer. C'est un modèle linéaire avec interactions entre deux, trois et quatre facteurs dans lequel on a pris toutes les interactions en considération. Les 16 essais à réaliser vont nous permettre de déterminer ces coefficients.

Les 16 coefficients sont :

$a_0$  : La valeur moyenne de la réponse ;

$a_1, \dots, a_4$  : Les effets linéaires ;

$a_{12}, a_{13}, a_{14}, a_{23}, a_{24}, a_{34}$  : Les effets d'interaction double ;

$a_{123}, a_{124}, a_{134}, a_{234}$  : Les effets d'interaction triple ;

$a_{1234}$  : L'effet d'interaction quadruple.

### 2.3.1. Matrice du modèle

A partir du modèle mathématique, on peut déduire la matrice du modèle présentée dans le tableau 5.3. Cette matrice comporte 16 colonnes associées aux 16 inconnues du modèle. La colonne  $X_0$  représente la constante du modèle, composée seulement de 1, les quatre colonnes suivantes sont associées aux facteurs et le reste des colonnes est associée aux interactions entre facteurs en multipliant les colonnes des facteurs utilisés dans l'interaction.

Essai n°	$X_0$	$X_1$	$X_2$	$X_3$	$X_4$	$X_1X_2$	$X_1X_3$	$X_1X_4$	$X_2X_3$	$X_2X_4$	$X_3X_4$	$X_1X_2X_3$	$X_1X_2X_4$	$X_1X_3X_4$	$X_2X_3X_4$	$X_1X_2X_3X_4$
1	1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	-1	-1	-1	+1
2	1	+1	-1	-1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	-1
3	1	-1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	+1	-1
4	1	+1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	-1	-1	+1	-1	-1	+1	+1	+1
5	1	-1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	+1	-1
6	1	+1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	+1	+1
7	1	-1	+1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	-1	+1
8	1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	-1	-1
9	1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	-1
10	1	+1	-1	-1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	+1	+1
11	1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	+1
12	1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	-1
13	1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	-1	+1
14	1	+1	-1	+1	+1	-1	+1	+1	-1	-1	+1	-1	-1	+1	-1	-1
15	1	-1	+1	+1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	-1	-1	-1	+1	-1
16	1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1

Tableau 5.3 Matrice du modèle X

## 2.4. Réalisation des essais

Classiquement, les expériences considérées par la méthode des plans d'expériences sont des processus réels qu'on fait réaliser effectivement et dans lesquels ils existent des modifications des conditions expérimentales, mais parfois l'objet qu'on veut étudier n'existe pas physiquement et il est impossible de réaliser des expériences. Dans ce cas, des outils de numériques seront utilisés pour la simulation de ces expériences.

Dans ce travail, la réponse  $k_{eff}$  sera calculée à partir des relations neutroniques évaluées dans les chapitres 2 et 3 en utilisant des outils numériques.

Comme une première application, nous commençons par le cas d'un réacteur sans réflecteurs où 16 évaluations de  $k_{eff}$  sont effectuées à l'aide de l'équation (Eq.2.35). pour chaque valeur de  $H$ ,  $R$ ,  $\Phi_T$  et  $V_{UO_2}$  on obtient une valeur pour  $k_{eff}$ . Les résultats obtenus de la réponse  $k_{eff}$  sont résumés dans le tableau suivant :

Essai n°	Réponse ( $k_{eff}$ )	Essai n°	Réponse ( $k_{eff}$ )
1	0.548149	9	0.634221
2	0.715022	10	0.804575
3	0.751771	11	0.841504
4	1.040120	12	1.125740
5	0.689380	13	0.825632
6	0.832792	14	0.976491
7	0.862118	15	1.006940
8	1.069480	16	1.218980

Tableau 5.4 Résultats obtenus pour  $k_{eff}$  dans le cas d'un réacteur nu

On ajoute un 17<sup>ème</sup> essai qui permet de calculer la valeur de la réponse au centre du domaine d'étude afin de l'utiliser ensuite dans la comparaison.

Essai n°	$X_1$	$X_2$	$X_3$	$X_4$	Réponse
17	0	0	0	0	1.048820

Tableau 5.5 Valeur de la réponse au centre du domaine d'étude

### 2.5. Calcul des coefficients du modèle

Les coefficients du modèle sont déterminés à partir de la relation (Eq.4.9). Leurs valeurs sont données ci-après :

Valeur moyenne	Effets linéaires				
	$a_0$	$a_1$	$a_2$	$a_3$	$a_4$
0.871212	0.101248	0.118369	0.064014	0.058048	

Effets d'interaction					
$a_{12}$	$a_{13}$	$a_{14}$	$a_{23}$	$a_{24}$	$a_{34}$
0.022756	-0.012039	0.00094	-0.014217	0.000661	0.013736
$a_{123}$	$a_{124}$	$a_{134}$	$a_{234}$	$a_{1234}$	-
-0.007109	-0.000868	0.000577	0.001135	0.000521	-

Tableau 5.6 Coefficients du modèle

D'après ce tableau on remarque que le poids de certains effets du modèle est faible, surtout le poids des effets liés à l'interaction d'ordre trois et quatre. Pour bien apprécier le poids de chaque effet, on utilise le diagramme des coefficients.

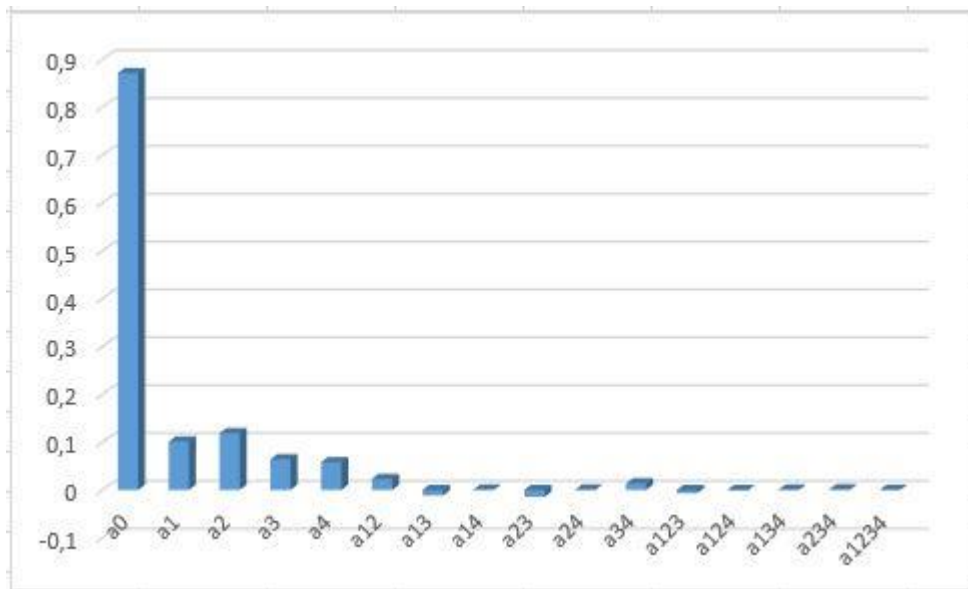


Figure 5.1 Diagramme à barres des coefficients du modèle de la réponse  $k_{eff}$

Puisque le poids des effets d'interactions d'ordre trois et quatre est très faible on va se limiter au modèle mathématique avec les principaux facteurs et restreindre les interactions à d'ordre deux seulement. Le modèle mathématique est comme suit :

$$Y = a_0 + a_1X_1 + a_2X_2 + a_3X_3 + a_4X_4 + a_{12}X_1X_2 + a_{13}X_1X_3 + a_{14}X_1X_4 + a_{23}X_2X_3 + a_{24}X_2X_4 + a_{34}X_3X_4 \quad (Eq.5.2)$$

Pour statuer sur le caractère significatif des coefficients dans ce modèle, une analyse statistique est nécessaire.

### 2.6. Analyse statistique du modèle

Afin d'identifier les éléments statistiquement significatifs dans le modèle, une analyse statistique sur les résultats d'essais a été effectuée. Chaque coefficient est donné avec sa valeur, son écart-type, avec coefficient du test de student et avec le p-value. Les résultats obtenus sont illustrés dans le tableau (5.7).

Coefficient	Valeur	Ecart-type	t de student	p-value
$a_0$	0.871212	0.003262	267.111	0.000
$a_1$	0.101248	0.003262	31.042	0.000
$a_2$	0.118369	0.003262	36.292	0.000
$a_3$	0.064014	0.003262	19.627	0.000
$a_4$	0.058048	0.003262	17.797	0.000
$a_{12}$	0.022756	0.003262	6.975	0.0009
$a_{13}$	-0.012039	0.003262	-3.691	<b>0.0141</b>
$a_{14}$	0.00094	0.003262	0.288	<b>0.7851</b>
$a_{23}$	-0.014217	0.003262	-4.359	0.0073
$a_{24}$	0.000661	0.003262	0.203	<b>0.8473</b>
$a_{34}$	0.013736	0.003262	4.211	0.0084

Tableau 5.7 Importance des coefficients du modèle

D'après ce tableau, on trouve que la constante et les quatre facteurs ont une valeur de p-value égale à 0 ; ce qui veut dire que l'épaisseur du réacteur, son rayon, sa porosité et sa teneur en uranium ont une influence significative sur la criticité et ils doivent être conservés dans le modèle mathématique. Pour une valeur fixée de la probabilité d'acceptation des coefficients à une valeur de p-value égale à 0.010, nous observons que les effets de l'interaction entre l'épaisseur et la porosité, l'épaisseur et la teneur en uranium et entre le rayon et la teneur en uranium ne sont pas significatifs ( $p\text{-value} > 0.010$ ); on peut donc les supprimer du modèle finale pour ne garder que les éléments influents. Avec cette valeur de p-value, on conservera

les quatre facteurs ainsi que les interactions 12, 23 et 34 jugés influents sur la criticité. Le modèle mathématique s'écrit donc :

$$Y = 0.871 + 0.101X_1 + 0.118X_2 + 0.064X_3 + 0.058X_4 + 0.023X_1X_2 - 0.014X_2X_3 + 0.014X_3X_4 \quad (Eq.5.3)$$

La valeur du coefficient de détermination calculée à partir de la relation (Eq.4.22) est égale à :

$$R^2 = 0.998 \quad (Eq.5.4)$$

La valeur de  $R^2$  est proche de 1, elle nous permet d'affirmer que ce modèle est adéquat. De plus, l'application de test de Fisher nous permet d'obtenir les résultats cités dans le tableau 5.8.

Source des variations	Somme des carrés	ddl	Carré moyen	Test F
Modèle corrigé de la moyenne	0.523499235	10	0.052349923	330.8621134
Résidus	0.000791114	5	0.000158223	0.000002066
Réponses mesurées corrigées de la moyenne	0.524290349	15		

Tableau 5.8 Analyse de variance du modèle

## 2.7. Analyse graphique

D'après la figure 5.2, on peut déduire que le modèle mathématique obtenu décrit bien la réponse puisque le nuage de points de la réponse calculés à partir du modèle (Eq.5.3) est très proche de la bissectrice. On peut donc étudier l'effet des facteurs et leurs interactions sur la criticité du ZR9.

### 2.7.1. Diagramme des effets

Les effets des facteurs  $H$ ,  $R$ ,  $\Phi_T$  et  $V_{UO_2}$  sont illustrés dans la figure 5.3. Il semble que le rayon du réacteur est le facteur ayant le plus d'influence sur la criticité. L'épaisseur vient ensuite comme deuxième facteur le plus influent. La porosité et la teneur en uranium ont presque le même effet sur la criticité. De plus, ces quatre facteurs ont tous un effet positif, c'est-à-dire l'augmentation de l'un de ces facteurs fait automatiquement augmenter la criticité.

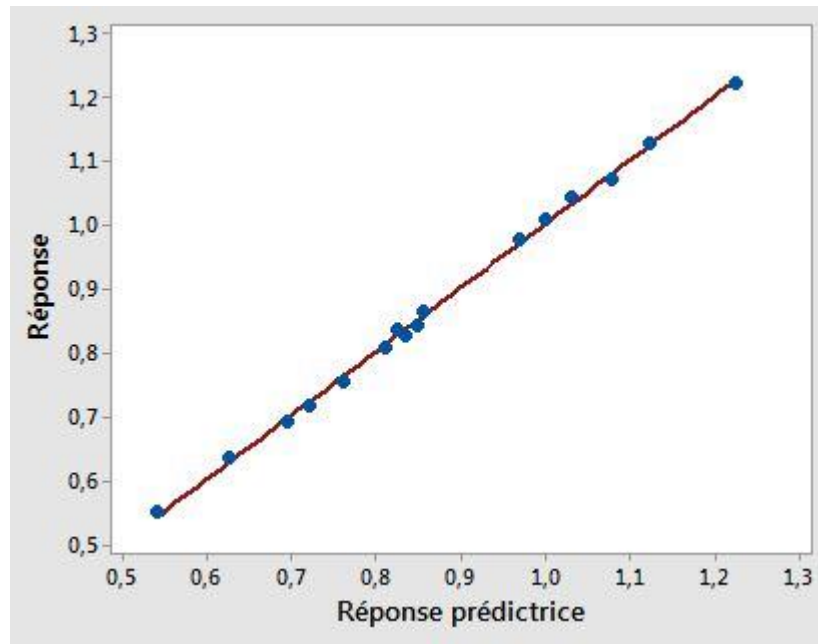


Figure 5.2 Droite d'ajustement du modèle

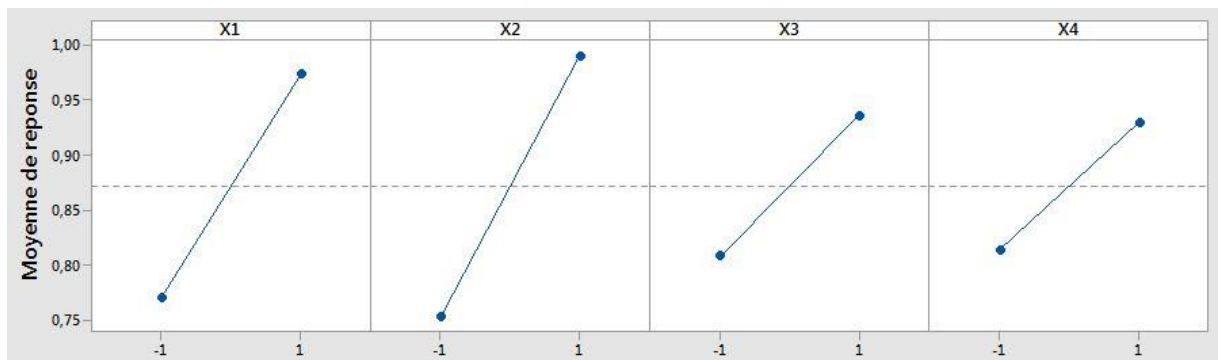


Figure 5.3 Effets des facteurs  $H, R, \Phi_T$  et  $V_{UO_2}$  sur la criticité du réacteur ZR9

### 2.7.2. Diagramme des interactions

La figure 5.4 montre bien ce qu'on a trouvé dans l'analyse statistique dans laquelle l'interaction entre les paramètres géométriques a montré l'importante influence qu'ils ont sur la criticité. L'effet de l'interaction entre les paramètres géométriques et les paramètres physiques est faible, il est négligeable concernant l'interaction entre la teneur en uranium et l'épaisseur d'une part et la teneur en uranium et le rayon d'autre part. Ce que l'on peut conclure, c'est que les paramètres géométriques entre eux et les paramètres physiques entre eux, ont une influence sur la criticité de manière séparée.

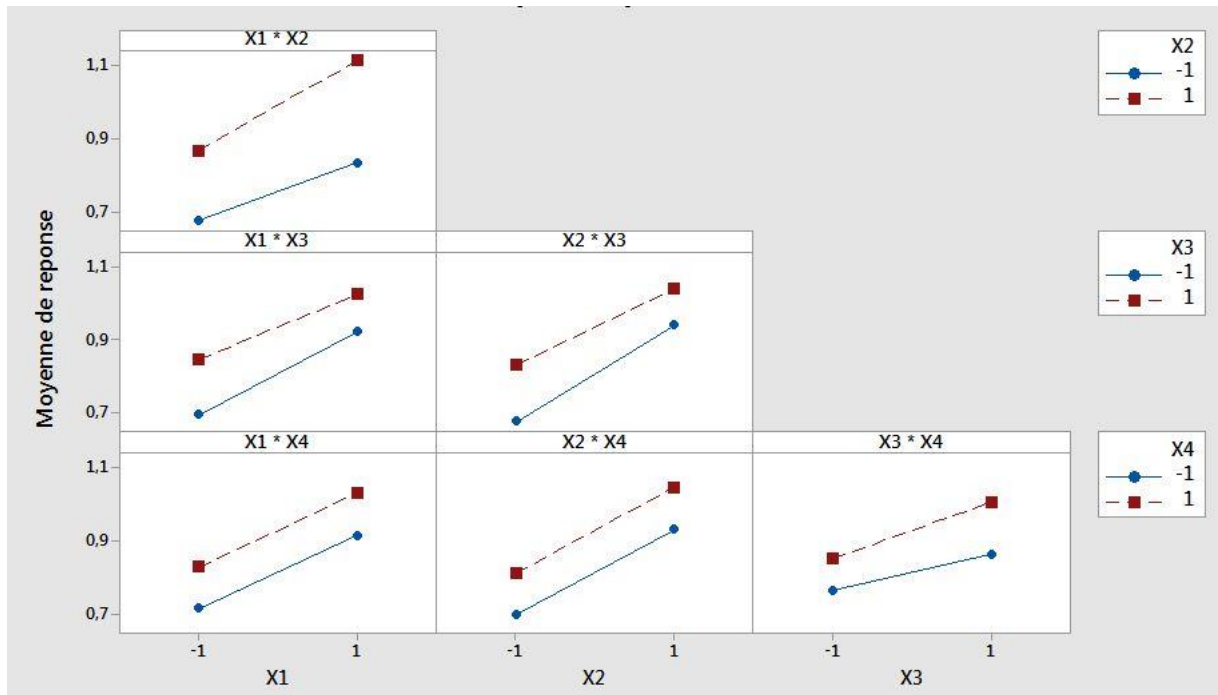


Figure 5.4 Effets des interactions entre facteurs sur la criticité du ZR9

Dans cette première partie de l'étude, nous avons pris en considération quatre facteurs pour construire un plan factoriel complet. Ceci nous a permis d'identifier les facteurs et les interactions influents et éliminer ceux qui ne présentent pas un effet significatif sur la criticité. Les quatre facteurs (épaisseur, rayon, porosité et teneur en uranium) ont été jugés influents et seront présents dans la construction du plan composite centré afin de modéliser la criticité. De plus, on a trouvé que les paramètres géométriques ont une influence importante. Par contre, l'analyse des interactions nous a permis de conclure que l'interaction entre les paramètres physiques et les paramètres géométriques du réacteur, à savoir l'épaisseur-teneur en uranium et celle entre le rayon et la porosité n'a pas un effet significatif sur la criticité.

Nous allons maintenant nous atteler à déterminer les valeurs de ces facteurs conduisant à  $k_{eff} = 1$ , pour cela une surface de réponse sera utilisée à partir du plan factoriel précédemment réalisé

### 3. Application du plan composite centré à l'étude de la criticité du ZR9

Il est vrai que l'application du plan factoriel nous a aidé à identifier les facteurs et les interactions influents et par conséquent, elle a conduit à réduire le nombre de coefficients et donc le nombre d'essais à réaliser. Par ailleurs, on remarque que la valeur de la réponse (Tab.5.5) calculée au centre du domaine n'est pas exactement égale à celle calculée par le



modèle mathématique obtenue par l'équation (Eq.5.3). Cela nécessite l'utilisation d'essais supplémentaires afin d'établir un modèle de second degré qui va nous permettre de modéliser la réponse.

Pour construire un plan composite centré, on va ajouter des essais en étoiles au plan factoriel précédemment utilisé. La position des points en étoiles sera déterminée en utilisant le critère de presque-orthogonalité (Eq.4.20). Le nombre d'essais du plan factoriel reste toujours  $N_f = 16$ , le nombre de point en étoile est  $N_\alpha = 8$  parce qu'on a quatre facteurs et le nombre de point au centre du domaine est  $N_0 = 1$ . Comme nous ne sommes pas en train de réaliser des expériences réelles, nul besoin de répéter l'essai au centre du domaine. Dans ce cas la valeur de  $\alpha$  sera :

$$\alpha = 1,41 \quad (\text{Eq.5.5})$$

### 3.1. Domaine d'étude

Après avoir déterminé la position des points en étoile, le domaine de variation de chaque facteur dans le cas de ce plan est le suivant :

Variables réelles	Variables centrées réduites	Niveau bas		Niveau moyen	Niveau haut	
		-1,41	-1	0	+1	+1,41
L'épaisseur (cm)	$X_1$	39.75	50	75	100	110.25
Le rayon (cm)	$X_2$	7.20	40	120	200	232.80
La porosité (%)	$X_3$	15.90	20	30	40	44.10
Le teneur en uranium (%)	$X_4$	3.385	4	5.5	7	7.615

Tableau 5.9 Domaine de variation des facteurs dans le cas d'un plan composite centre

### 3.2. Modèle mathématique

L'équation du modèle mathématique de second degré avec interactions d'ordre deux et pour quatre facteurs s'écrit :

$$Y = a_0 + a_1X_1 + a_2X_2 + a_3X_3 + a_4X_4 + a_{11}X_1^2 + a_{22}X_2^2 + a_{33}X_3^2 + a_{44}X_4^2 + a_{12}X_1X_2 + a_{23}X_2X_3 + a_{34}X_3X_4 \quad (\text{Eq.5.6})$$

### 3.3. Matrice d'expérience complémentaire et matrice du modèle pour le modèle du second degré

La matrice d'expérience dans ce cas va comporter 25 lignes : 16 lignes du plan factoriel, une ligne pour le point au centre et 8 lignes pour les points en étoile. La matrice complémentaire est la suivante :

Essai n°	$X_1$	$X_2$	$X_3$	$X_4$
18	-1.41	0	0	0
19	+1.41	0	0	0
20	0	-1.41	0	0
21	0	+1.41	0	0
22	0	0	-1.41	0
23	0	0	+1.41	0
24	0	0	0	-1.41
25	0	0	0	+1.41

Tableau 5.10 Matrice d'expérience complémentaire

La matrice du modèle comporte 12 colonnes relatives aux 12 coefficients à déterminer et 25 lignes qui représentent les essais à réaliser. La matrice du modèle est illustrée dans le tableau 5.11. Cette matrice va être utilisée dans le cas du réacteur sans et avec réflecteur.

### 3.4. Estimation du modèle mathématique

#### 3.4.1. Cas du réacteur sans réflecteurs

Pour élaborer le modèle mathématique de second degré, on conserve les résultats des seize essais du plan factoriel (Tab.5.4) ainsi que le résultat de l'essai au centre du domaine (Tab.5.5) et on réalise seulement les huit essais du plan en étoile. Les résultats des 8 essais de la matrice d'expérience sont obtenus (Tab.5.12) en calculant  $k_{eff}$  par la relation (Eq.2.35).

Essai n°	18	19	20	21	22	23	24	25
Réponse ( $k_{eff}$ )	0.747507	1.137150	0.038866	1.07523	0.929137	1.08998	0.922002	1.10337

Tableau 5.12 Résultats du plan en étoile

Essai n°	$X_0$	$X_1$	$X_2$	$X_3$	$X_4$	$X_1^2$	$X_2^2$	$X_3^2$	$X_4^2$	$X_1X_2$	$X_2X_3$	$X_3X_4$
1	1	-1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
2	1	+1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	-1	+1	+1
3	1	-1	+1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	-1	-1	+1
4	1	+1	+1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	+1
5	1	-1	-1	+1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	-1
6	1	+1	-1	+1	-1	+1	+1	+1	+1	-1	-1	-1
7	1	-1	+1	+1	-1	+1	+1	+1	+1	-1	+1	-1
8	1	+1	+1	+1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1
9	1	-1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1
10	1	+1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1
11	1	-1	+1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	-1	-1
12	1	+1	+1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	-1
13	1	-1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	+1
14	1	+1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	-1	+1
15	1	-1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	-1	+1	+1
16	1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
17	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
18	1	-1.41	0	0	0	1.988	0	0	0	0	0	0
19	1	+1.41	0	0	0	1.988	0	0	0	0	0	0
20	1	0	-1.41	0	0	0	1.988	0	0	0	0	0
21	1	0	+1.41	0	0	0	1.988	0	0	0	0	0
22	1	0	0	-1.41	0	0	0	1.988	0	0	0	0
23	1	0	0	+1.41	0	0	0	1.988	0	0	0	0
24	1	0	0	0	-1.41	0	0	0	1.988	0	0	0
25	1	0	0	0	+1.41	0	0	0	1.988	0	0	0

Tableau 5.11 matrice du modèle pour un plan composite centré

A partir des résultats obtenus des 25 essais réalisés on peut identifier les 12 coefficients du modèle mathématique en appliquant toujours le calcul du produit matricielle (Eq.4.9). L'équation retenue pour le modèle s'écrit donc:

$$Y = 0.946 + 0.108X_1 + 0.167X_2 + 0.062X_3 + 0.059X_4 + 0.011X_1^2 - 0.183X_2^2 + 0.045X_3^2 + 0.046X_4^2 + 0.022X_1X_2 - 0.014X_2X_3 + 0.014X_3X_4 \quad (Eq.5.7)$$

Ce modèle nous permet de tracer les courbes d'iso-réponses qui permettent de connaître les différentes combinaisons des facteurs permettant de conduire à une valeur critique de  $k_{eff}$ .

Les variations de  $k_{eff}$  sont présentées en fonction de deux facteurs en maintenant les autres facteurs fixes. La figure 5.5 montre les courbes d'iso-réponses de  $k_{eff}$  en fonction du rayon et de l'épaisseur, du rayon et de la porosité, et du rayon et de la teneur en uranium. Dans la figure (5.5.a) la porosité est fixée à  $\Phi_T = 30\%$  et la teneur en uranium à  $V_{UO_2} = 5\%$ . Dans la figure (5.5.b) l'épaisseur et la teneur en uranium sont respectivement  $H = 70cm$  et  $V_{UO_2} = 5\%$  et dans la figure (5.5.c) les valeurs de l'épaisseur et de la porosité sont fixées à  $H = 70cm$  et  $\Phi_T = 30\%$

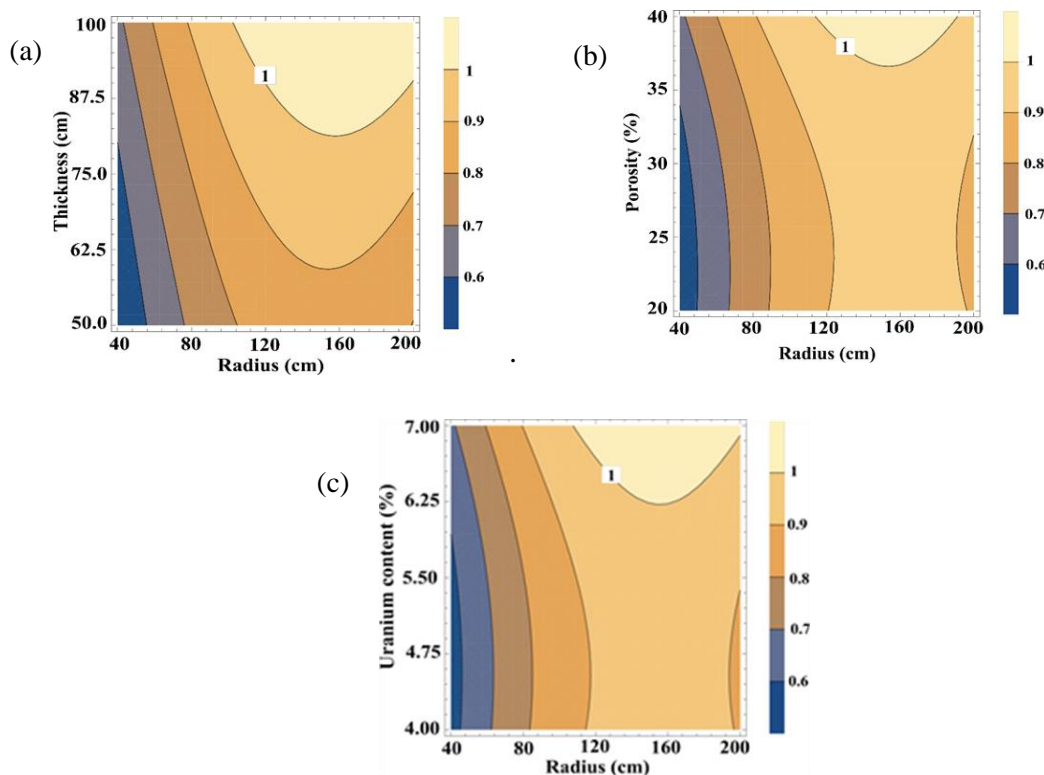


Figure 5.5 Courbes d'iso-réponses pour la criticité du ZR9 sans réflecteurs dans le plan: (a) rayon-épaisseur, (b) rayon-porosité, (c) rayon-teneur en uranium

D'après la figure 5.5, on peut observer que dans la région critique, pour  $k_{eff} = 1$ , les valeurs de flexion du rayon  $R$  du cœur du réacteur sont respectivement  $R = 157.6\text{ cm}$ ,  $R = 154.4\text{ cm}$  et  $R = 156.0\text{ cm}$  ; ce qui conduit à une valeur moyenne d'environ  $R = 156\text{ cm}$ . A cette valeur du rayon l'épaisseur, la porosité et la teneur en uranium sont les plus petites possibles. Pour des valeurs inférieures ou supérieures à  $R = 156\text{ cm}$ , on trouve que l'épaisseur, la porosité et la teneur en uranium prennent des valeurs qui peuvent être considérées comme plutôt grandes. Par ailleurs, on désire connaître le comportement de la criticité du ZR9 à cette valeur du rayon ( $R = 156\text{ cm}$ ). Pour cela on trace les courbes d'iso-réponses de  $k_{eff}$  en fonction de l'épaisseur et la porosité (fig.5.6.a) puis en fonction de l'épaisseur et de la teneur en uranium (Fig.5.6.b). Ces figures montrent que la plus grande valeur que peut prendre l'épaisseur à  $R = 156\text{ cm}$  pour  $k_{eff} = 1$  est  $H \approx 83\text{ cm}$  à faible valeurs de porosité et teneur en uranium ( $\Phi_T \approx 23\%$ ,  $V_{UO_2} \approx 4.5\%$ ). Pour la plus petite épaisseur  $H = 55\text{ cm}$ , on peut observer que la criticité peut se produire mais à forte porosité et teneur en uranium ( $\Phi_T \geq 40\%$ ,  $V_{UO_2} \geq 4\%$ ).

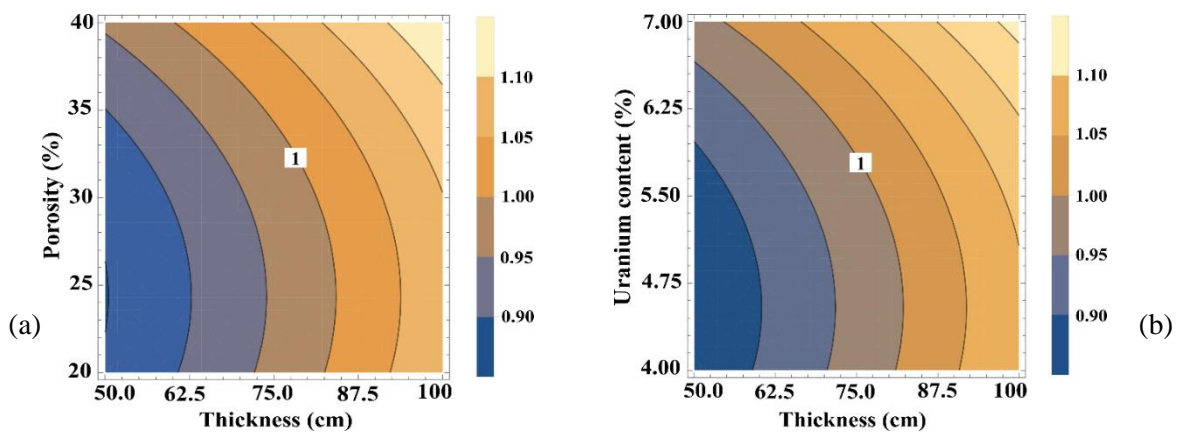


Figure 5.6 Courbes d'iso-réponses pour la criticité du ZR9 sans réflecteurs à  $R=156\text{ cm}$  dans le plan:(a) épaisseur-porosité, (b) épaisseur- teneur en uranium

Pour bien visualiser sous quelles conditions de porosité et de teneur en uranium nous pouvons obtenir la criticité à  $H = 55\text{ cm}$  et  $R = 156\text{ cm}$ , une courbe d'iso-réponse de  $k_{eff}$  est tracée (Fig. 5.7). On peut observer maintenant que la criticité peut être atteinte pour la plus petite épaisseur à une porosité comprise entre 30% et 40% et une teneur en uranium allant de 5.5% à 7%.

Ce modèle mathématique nous a donné une plus large gamme de valeurs pouvant conduire à une situation critique ( $k_{eff} = 1$ ) de ZR9 sans réflecteurs, il permet aussi d'obtenir d'autres courbes d'iso-réponses pour toutes les valeurs de  $H, R, \Phi_T$  et  $V_{UO_2}$  appartenant au domaine

d'étude. Nous constatons que ce modèle a permis de reproduire correctement la réponse et pour valider ce constat, nos résultats sont comparés à ceux obtenus par le code Monte Carlo MCNP dans les mêmes conditions géométriques et physiques du réacteur ZR9. Le tableau 5.13 présente les points de validation et les résultats obtenus d'une part par l'utilisation du modèle mathématique (Eq.5.7) et d'autre part par l'utilisation du code MCNP et l'équation (Eq.2.35).

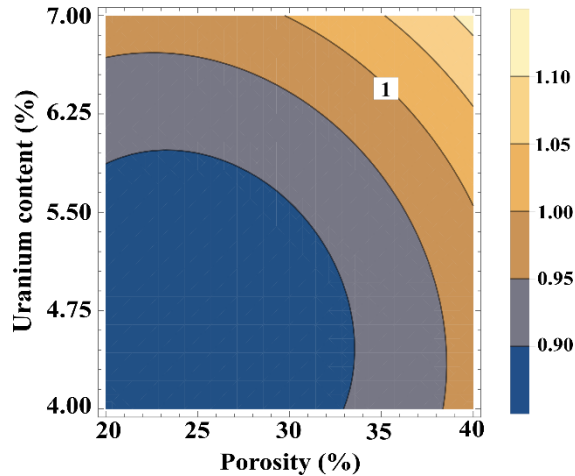


Figure 5.7 Courbe d'iso-réponse pour la criticité du ZR9 à R = 156 cm et H = 55 cm dans le plan: porosité-teneur en uranium

L'épaisseur (cm)	Le rayon (cm)	La porosité (%)	Teneur en uranium (%)	La réponse ( $k_{eff}$ )		
				Calculée par le modèle	Calculée par Eq.2.35	Calculée par le code MCNP
55	156	40	5.55	1	0.9929	0.9898
55	156	37	6.25	1	1.0012	1.0020
70	192	40	5	1	1.0562	1.0418
82	156	30	4	1	1.0299	1.0056
87.5	192	30	4.33	1	1.0347	1.0205

Tableau 5.13 Résultats de validation du modèle mathématique pour le réacteur ZR9 sans réflecteur

On peut voir que la plupart des résultats obtenus par le modèle mathématique en utilisant le plan composite centre sont très proches de ceux obtenus par le code MCNP6 et l'équation (Eq.2.35).

### 3.4.2. Cas du réacteur avec réflecteurs

Pour rendre la configuration plus réaliste et en suivant la même approche que dans le cas d'un réacteur sans réflecteurs, la méthodologie des plans composites centrés a été appliquée au

cas du réacteur ZR9 avec réflecteurs. Le nombre d'essais à réaliser reste le même que dans la première partie de l'étude. Seule la méthode de calcul de la réponse  $k_{eff}$  au cas du cœur réfléchi va changer. Donc 25 calculs de  $k_{eff}$  seront établis en utilisant les équations ( Eq.3.60 ) avec les deux conditions ( Eq.3.16 ) et ( Eq.3.39 ). Au cours des calculs, nous avons utilisé le logiciel Wolfram Mathematica 9.

### 3.4.2.1. Matrice d'expérience et résultats obtenus

La matrice d'expérience dans ce cas est la même que la celle précédemment utilisée pour étudier le réacteur sans réflecteurs. Les résultats des 25 essais de la matrice d'expérience concernant la réponse  $k_{eff}$  sont présentés dans le tableau suivant :

Essai n°	$X_1$	$X_2$	$X_3$	$X_4$	Réponse
1	-1	-1	-1	-1	0.73950
2	+1	-1	-1	-1	0.88036
3	-1	+1	-1	-1	0.93574
4	+1	+1	-1	-1	1.08473
5	-1	-1	+1	-1	0.84746
6	+1	-1	+1	-1	0.96194
7	-1	+1	+1	-1	1.00615
8	+1	+1	+1	-1	1.11719
9	-1	-1	-1	+1	0.83101
10	+1	-1	-1	+1	0.97624
11	-1	+1	-1	+1	1.02044
12	+1	+1	-1	+1	1.1719
13	-1	-1	+1	+1	0.96982
14	+1	-1	+1	+1	1.08780
15	-1	+1	+1	+1	1.13199
16	+1	+1	+1	+1	1.24836
17	0	0	0	0	1.11719
18	-1.41	0	0	0	0.961453
19	+1.41	0	0	0	1.17404
20	0	-1.41	0	0	0.300519
21	0	+1.41	0	0	1.14211
22	0	0	-1.41	0	1.028812
23	0	0	+1.41	0	1.11933

<b>24</b>	0	0	0	-1.41	0.98890
<b>25</b>	0	0	0	+1.41	1.17404

Tableau 5.14 Matrice d'expérience et résultats d'essais pour ZR9 réfléchi

L'application du produit matriciel (Eq.4.9) sur les résultats des 25 essais a permis d'obtenir les 12 coefficients (Tab.5.15).

<b>Valeur moyenne</b>	<b>Effets linéaires</b>			
$a_0$	$a_1$	$a_2$	$a_3$	$a_4$
1.024	0.067	0.131	0.043	0.056
<b>Effets quadratiques</b>				
$a_{11}$	$a_{22}$	$a_{33}$	$a_{44}$	
0.034	0.140	0.037	0.041	
<b>Effets d'interactions</b>				
$a_{12}$	$a_{23}$	$a_{34}$	/	
0.001	-0.009	0.009	/	

Tableau 5.15 Coefficients du modèle mathématique

Dans ce cas le modèle mathématique s'écrit comme suit :

$$Y = 1.024 + 0.067X_1 + 0.131X_2 + 0.043X_3 + 0.056X_4 + 0.034X_1^2 - 0.140X_2^2 + 0.037X_3^2 + 0.041X_4^2 + 0.001X_1X_2 - 0.009X_2X_3 + 0.009X_3X_4 \quad (Eq.5.8)$$

Ce modèle mathématique nous permet de tracer les courbes d'iso-réponse de la criticité de ZR9 réfléchi.

### 3.4.2.2. Courbes d'iso-réponses

On suit les mêmes étapes que précédemment décrites, les variations de la réponse sont présentées en fonction de deux facteurs en maintenant fixes les autres facteurs.

On peut observer que dans la région critique, pour les valeurs faibles d'épaisseur (Fig. 5.8.a), de la porosité (Fig. 5.8.b) et de la teneur en uranium (Fig. 5.8.c), les valeurs du rayon  $R$  sont respectivement 140 cm, 123.5 cm et 122.5 cm avec une valeur moyenne d'environ 128 cm. Pour  $R \geq 128$  cm la criticité est atteinte pour toutes les configurations. La première remarque qui attire l'attention est que la présence de réflecteurs a beaucoup contribué à la réduction du rayon  $R$  du ZR9. On fixe le rayon à cette valeur spécifique et on étudie la criticité en fonction de l'épaisseur et la porosité, l'épaisseur et la teneur en uranium. Les figures 5.9.a et 5.9.b confirment bien que les réflecteurs ont contribué à obtenir des configurations critiques pour des faibles valeurs des paramètres aussi bien géométriques que physiques. En particulier, la criticité



est possible pour un cœur mince de ZR9 avec  $H = 50$  cm et  $R = 128$  cm, dans des conditions de porosité entre 20% et 35% et une teneur en uranium entre 4% et 5.8% comme le montre la figure 5.10.

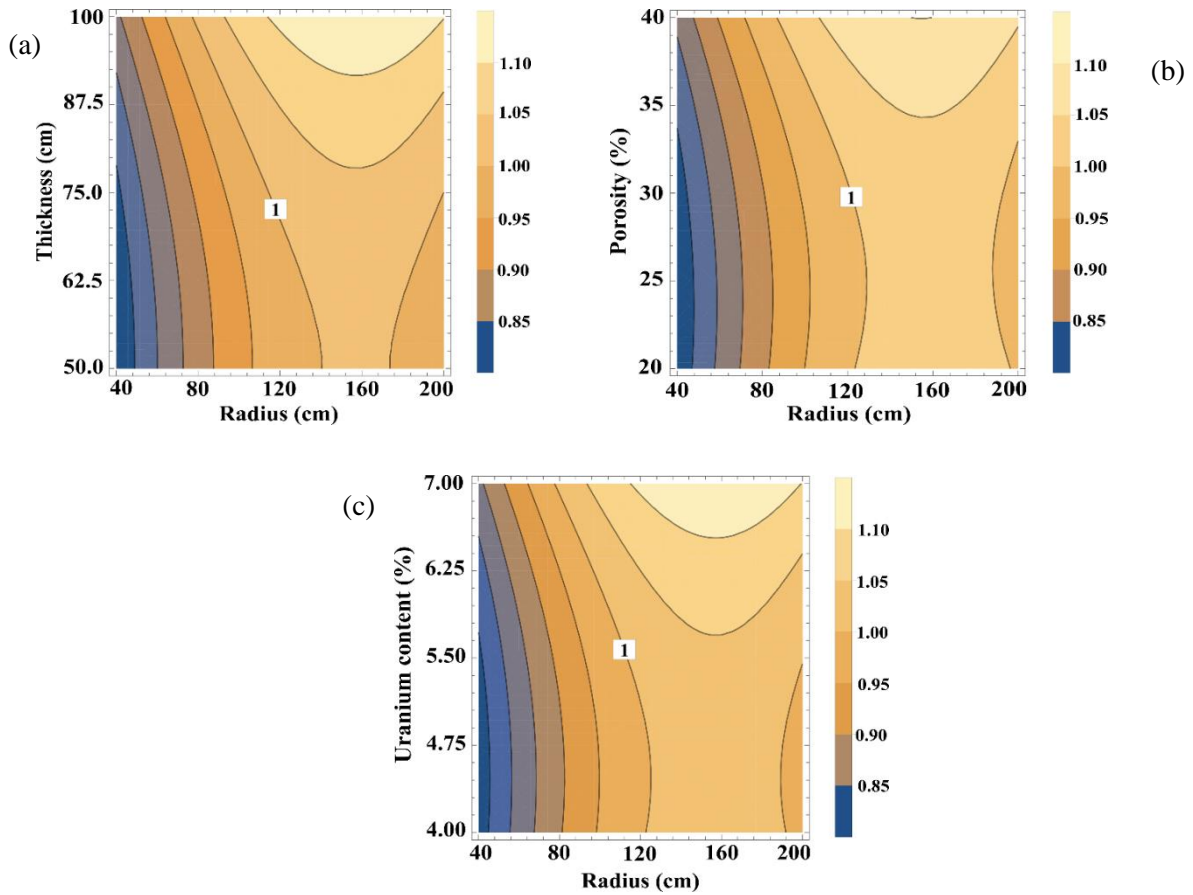


Figure 5.8 Courbe d'iso-réponse pour la criticité de ZR9 réfléchi dans le plan: (a) rayon-épaisseur, (b) rayon-porosité, (c) rayon-teneur en uranium

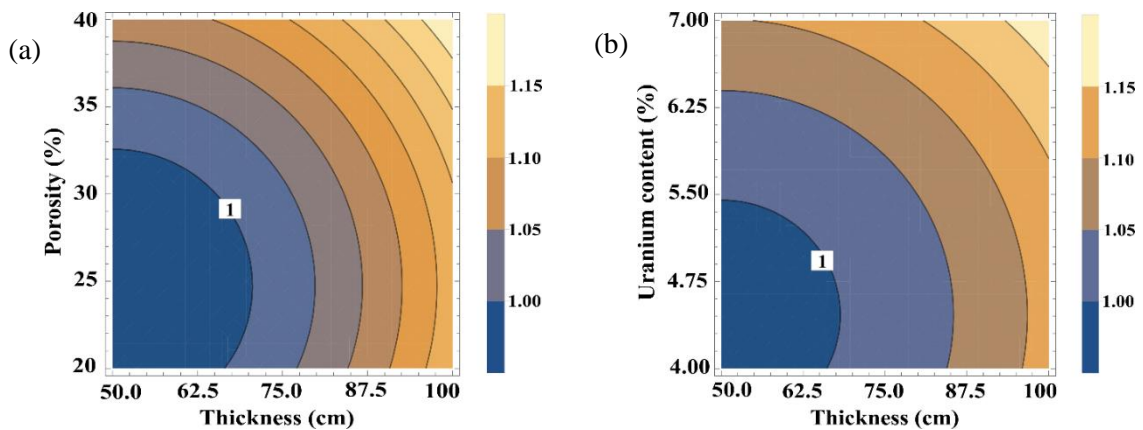


Figure 5.9 Courbe d'iso-réponse pour la criticité de ZR9 réfléchi dans le plan: (a) épaisseur-porosité, (b) épaisseur-teneur en uranium

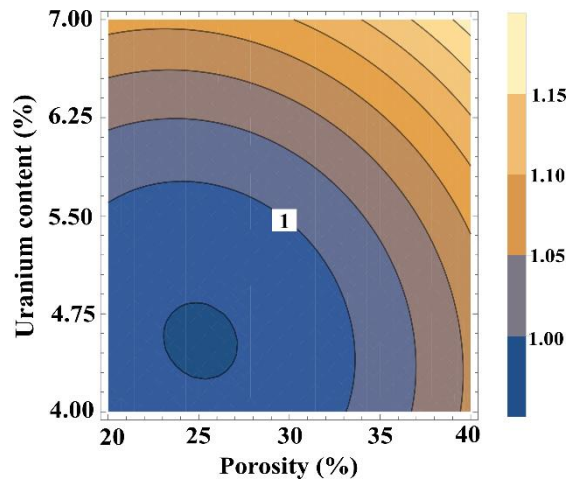


Figure 5.10 Courbe d'iso-réponse pour la criticité de ZR9 réfléchi dans le plan porosité-teneur en uranium.

Pour valider les résultats obtenus, nous avons effectué de nouveaux essais dans le domaine d'étude en des points non testés par le plan d'expérience en portant l'intérêt sur par la région de la criticité. Le tableau 5.16 présente les points de validation par l'utilisation du code MCNP Monte Carlo et la relation (Eq.3.60).

L'épaisseur (cm)	Le rayon (cm)	La porosité (%)	Teneur en uranium (%)	La réponse ( $k_{eff}$ )		
				Calculée par le modèle	Calculée par Eq.3.60	Calculée par le code MCNP
50	128	32.5	5	1	1.0199	1.0250
50	128	33.3	4.75	1	1.0047	1.0164
70	120	30	5.14	1	1.0929	1.0756
66.25	128	30	4	1	1.0169	1.0158
70	128.9	25	5	1	1.0719	1.0565

Tableau 5.16 Résultats de validation du modèle mathématique obtenu pour le réacteur ZR9 réfléchi

Ces points de validation montrent bien que le modèle obtenu a permis de modéliser la criticité du ZR9. Il permet également de déterminer les plus faibles valeurs possibles des paramètres géométriques pour lesquelles l'occurrence de la criticité dans ce réacteur est possible.

L'utilisation du modèle mathématique (Eq.5.8) nous a permis de trouver que les dimensions géométriques les plus petites qui permettent au réacteur ZR9 d'atteindre la criticité sont autour

de 60 cm pour l'épaisseur et 80 cm pour le rayon mais à condition que la porosité et la teneur en uranium soient en quantité importante, soit 37.5% et 6.25%.

Au final on peut dire qu'à travers l'utilisation du plan factoriel complet, l'étude nous a permis de confirmer que les quatre facteurs ont une influence statiquement significative et que les interactions épaisseur-rayon, rayon-porosité et porosité-teneur en uranium ont une influence importante sur le comportement de la criticité du réacteur.

Par la suite, un modèle polynomial de second degré composé de 12 coefficients a été élaboré. Des prédictions sont effectuées par ce modèle dans l'ensemble du domaine d'étude. Nous sommes arrivés à la conclusion que la criticité peut avoir lieu pour des faibles dimensions du cœur de ZR9 et qu'elle est beaucoup plus sensible aux variations du rayon R. Nous avons ainsi montré que le rayon est le facteur le plus influent sur la criticité. Lorsque les valeurs du rayon sont entre 100 cm et 130 cm, la porosité et la teneur en uranium prennent des valeurs moyennes autour de 32% et 55% avec une épaisseur mince de 50 cm. Pour des rayons plus petits (inférieur à 100 cm), les valeurs de la porosité et de la teneur en uranium augmentent jusqu'aux limites supérieures des intervalles de variations dans les configurations des réacteurs aplatis à épaisseur mince.

---

## **Conclusion générale**

---

Lorsque Enrico Fermi et ses collègues ont inventé leur premier réacteur à fission nucléaire, dans le gymnase de l'Université de Chicago, ils ne savaient pas qu'ils venaient juste de reproduire ce qui s'est déroulé spontanément il y a 2 milliard d'années dans la région d'Oklo au Gabon. Si un tel phénomène a pu avoir lieu c'est bien parce qu'un ensemble de conditions physique et géologique se sont réunies à cet endroit. Ce phénomène reste un cas exceptionnel et unique.

Notre travail avait pour but d'étudier et de chercher les conditions d'occurrence de la criticité dans la zone de réaction n°9 du gisement uranifère d'Oklo. En utilisant la composition chimique du minerai initial et en choisissant une géométrie cylindrique simple, la criticité du ZR9 a été étudiée en cherchant des configurations pour lesquelles la condition  $k_{eff} = 1$  était satisfaite. L'étude a été réalisée en prenant en considération les paramètres les plus influents tel que : la teneur en uranium, la porosité du milieu et les paramètres géométriques du cœur de la zone de réaction en termes d'épaisseur et du rayon. Une méthode analytique basée sur la théorie de diffusion à deux groupes a été utilisée dont le but est de trouver une expression analytique reliant le facteur de multiplication effective ( $k_{eff}$ ) aux paramètres précédemment cités. L'influence de ces paramètres sur la criticité du ZR9 a été étudiée en utilisant la méthode des plans d'expériences qui nous a permis d'apprécier l'effet de chaque paramètre sur la criticité ainsi que l'effet de leurs interactions. L'utilisation de cette méthode nous a permis aussi d'établir un nouvel ensemble de conditions d'occurrence de la criticité selon le modèle adopté par des travaux portant sur le réacteur ZR9.

Les quatre paramètres ont été jugés influents et ont tous un effet positif ce qui veut dire que l'augmentation de ces paramètres fait augmenter la criticité. Nous avons pu montrer que le paramètre qui a le plus d'influence sur la criticité du ZR9 est le rayon « R » de la zone de réaction suivi de près par le paramètre d'épaisseur. On a ainsi pu déduire que les paramètres géométriques sont les paramètres les plus influents sur le déroulement de la criticité.

Le diagramme des effets d'interaction entre les paramètres montre que l'effet de l'interaction entre les paramètres géométriques et les paramètres physiques sur la criticité est faible. Le domaine de variation de chaque paramètre physique : la porosité et la teneur en uranium a été choisi selon les travaux effectués sur ce type de formation géologique.

Dans ce travail deux configurations ont été considérées. Le premier modèle correspond à un cœur nu sans réflecteurs et sans poisons neutroniques. Ce modèle reste un cas théorique

qui permet de tester l'approche analytique qu'on a adoptée. Le deuxième modèle, qui est plus proche à la situation réelle, prend en compte l'effet de l'environnement proche du cœur en introduisant des milieux réflecteurs sans poisons neutroniques.

Ensuite et afin de déterminer les valeurs de ces paramètres conduisant à ( $k_{eff} = 1$ ), une surface de réponse a été définie à travers l'utilisation des plans composites centrés. L'application de cette méthode sur le premier modèle nous a donné une gamme de valeur pouvant conduire à une situation critique dans laquelle la valeur spécifique du rayon R est d'environ 156 cm. A cette valeur, l'épaisseur, la porosité et la teneur en uranium sont les plus petits possibles. Pour une valeur plus petite de l'épaisseur  $H = 55$  cm et à un rayon de  $R = 156$  cm la criticité peut se produire mais à forte porosité et teneur en uranium ( $30\% < \Phi_T < 40\%$ ) et ( $5.5\% < V_{UO_2} < 7\%$ ). La méthode des plans composites centrés est appliquée aussi sur le deuxième modèle. D'après les courbes d'iso-réponses obtenues, on arrive à constater que la contribution des réflecteurs conduit à une réduction significative du volume critique même pour les faibles valeurs de porosité et de teneur en uranium. Dans ce cas la valeur spécifique du rayon est au aussi faible que  $R = 128$  cm. A cette valeur de rayon, la criticité est possible pour un cœur mince avec  $H = 50$  cm pour des valeurs de la porosité allant de 20% à 35% et une teneur en uranium entre 4% et 5.8%. La criticité est aussi possible pour les dimensions géométriques les plus petites mais à conditions que la porosité et la teneur en uranium soient en quantités plus importantes.

Au final l'application de la méthode des plans d'expérience s'est avérée assez efficace à l'étude de la criticité du réacteur ZR9 et nous a permis d'obtenir un nouvel ensemble de conditions pouvant conduire à  $k_{eff} = 1$ .

---

## **Bibliographie**

---

- 1) **(Naudet et Filip, 1975)** : R.Naudet et A. Filip, 1975, *in the Oklo phenomenon : Etude du bilan neutronique des réacteurs nucléaires d'Oklo*, IEA-SM-204, IAEA-SM-204/38, p. 527, (IAEA, Vienna, 1975).
- 2) **(Bodu et al, 1972)** : R. Bodu, H. Bouzigues, N. Morin, and J.-P. Pfiffelmann, *sur l'existence d'anomalies isotopiques rencontrées dans l'uranium du Gabon*, C. R. Acad. Sci. Ser. D 275, 1731 (1972).
- 3) **(Neuilly et al, 1972)** : M. Neuilly, J. Bussac, C. Frejacgues, G. Nief, G. Vendryes, and J. C. R. Yvon, *Sur l'existence dans un passé reculé d'une réaction en chaîne naturelle de fission dans le gisement d'uranium d'Oklo (Gabon)*, C. R. Acad. Sci. Ser. D 275, 1847 (1972).
- 4) **(Petrov et al, 2006)**: Petrov, Yu. V., Nazarov, A.I., Onegin, M.S., Petrov, V.Yu, Sakhnovsky, E.G. *Natural nuclear reactor at Oklo and variation of fundamental constants: computation of neutronics of a fresh core*. Phys. Rev. C74, 1–17, (2006).
- 5) **(Wetherill, 1953)**: George W. Wetherill, *Spontaneous Fission Yields from Uranium and Thorium*, Phys. Rev. 92, 907 (1953).
- 6) **(Kuroda, 1956)**: P. K. Kuroda, *On the Nuclear Physical Stability of the Uranium Minerals*, J. Chem. Phys. 25, 781, 1295 (1956).
- 7) **(Bouzigues et al, 1975)**: H. Bouzigues, R. J. M. Boyer, C. Seyve, and P. Teulieres, *in The Oklo Phenomenon*, IEA-SM-204, IAEA-SM-204/36, p. 237, (IAEA, Vienna, 1975).
- 8) **(Dozol et Neuilly, 1975)**: J. F. Dozol and M. Neuilly, *In the Oklo Phenomenon: Analyse isotopique des terres rares continues dans le minerai d'Oklo*, IEA-SM- 204, IAEA-SM-204/29, p. 357, (IAEA, Vienna, 1975).
- 9) **(Ruffenach, 1979)**: Jean Claude Ruffenach, *les réacteurs nucléaires naturels d'Oklo: Paramètres neutroniques, date et durée de fonctionnement, migration de l'uranium et de produits de fission*, Thèse de doctorat, université de paris 7, 1979.
- 10) **(Gauthier-Lafaye, 1986)** : F. Gauthier-Lafaye, *Les gisements d'uranium du Gabon et les réacteurs d'Oklo. modèle métallogénie de gites à fortes teneurs du protérozoïque inférieur*, Thèse de doctorat, université Louis Pasteur, Strasbourg, 1986.
- 11) **(Gauthier-Lafaye, 2002)**: F. Gauthier-Lafaye, *From nuclear fuels to waste: current research: 2 billion year old natural analogs for nuclear waste disposal: the natural nuclear fission reactors in Gabon (Africa)*. C.R. Physique 3, 839–849.2002.
- 12) **(Gauthier-Lafaye et Weber, 2003)**: F. Gauthier-Lafaye., Weber, F., *Natural Nuclear fission reactors: time constraints for occurrence, and their relation to uranium and*



- manganese deposits and to the evolution of the atmosphere*. Precambrian Res. 120, 81–100, 2003.
- 13) **(Gauthier-Lafaye, 2006)**: Gauthier-Lafaye, F., *Time constraint for the occurrence of uranium deposits and natural nuclear fission reactors in the Paleoproterozoic Franceville Basin (Gabon)*. In: Kesler, S.E., Ohmoto, H. (Eds.), *Evolution of Early Earth's Atmosphere, Hydrosphere, and Biosphere-Constraints from Ore Deposits*, vol. 198. Geological Society of America Memoir, pp. 157–167, 2006.
- 14) **(Bentridi, 2012)**: Bentridi Salah-Eddine, *Modélisation et simulation numérique d'un milieu multiplicateur de neutrons par les méthodes de MONTE-CARLO: cas de la zone de réaction n°9 à Oklo (Gabon)*, thèse de doctorat, l'école normale supérieure de Kouba-Alger, 2012.
- 15) **(Gauthier-Lafaye et al, 1996)**: Gauthier-Lafaye, F., Holliger, P., Blanc, P.L., *Natural fission reactors in the Franceville basin, Gabon: a review of the conditions and results of a "critical event" in a geologic system*, *Geochem. Cosmochim. Acta* 60, 4831–4852, 1996.
- 16) **(Naudet, 1991)**: Naudet, R., *Des Réacteurs Nucléaires Fossiles-Etude Physique*. Eyrolles, Paris, 1991.
- 17) **(Bentridi et al, 2011a)**: Bentridi, S.E., Gall, B., Gauthier-Lafaye, F., Seghour, A., Medjadi, D.E., *Inception and evolution of Oklo natural nuclear reactor*. *C. R. Geoscience* 343, 738–748, 2011a.
- 18) **(Bentridi et al, 2011b)**: Bentridi, S.E., Gall, B., Gauthier-Lafaye, F., Seghour, A., *Monte-Carlo based numerical modelling and simulation of criticality conditions occurrence in natural reactor zone 9 in Oklo deposit (Gabon)*. *Prog. Nucl. Sci. Technol.* 2, 395–400, 2011b.
- 19) **(Loss et al, 1988)**: Loss, R.D., De Laeter, J.R., Rosman, K.J.R., Benjamin, T.M., Curtis, D.B., Gancarz, A.J., Delmore, J.E., Maeck, W.J., *The Oklo natural reactors, cumulative fission yields and nuclear characteristics of reactor zone 9*. *Earth Planet. Sci. Lett.* 89, 193–206.1988.
- 20) **(Ruffenach et al, 1975)**: J-C. Ruffenach, J. Menes, Monique Lucas, R. Hagemann, G. Nief, *The Oklo phenomenon: Analyses isotopiques fines des produits de fission et détermination des principaux paramètres des réactions nucléaires*, IEA-SM-204, IAEA-SM-204/27, p. 371, (IAEA, Vienna, 1975).
- 21) **(Hagemann et al, 1975)** : R. Hagemann, C. Devillers, M. Lucas, T. Lecomte, J-C. Ruffenach, *The Oklo phenomenon : Estimation de la durée de la réaction, Limitations*

- imposées par les données neutroniques*, IEA-SM-204, IAEA-SM-204/28, p.415, (IAEA, Vienna, 1975).
- 22) **(Meshik et al, 2004)**: A. P. Meshik, C. M. Hohenberg, and O. V. Pravdivtzeva, *Record of Cycling Operation of the Natural Nuclear Reactor in the Oklo/Okelobondo Area in Gabon*, Phys. Rev. Lett. 93, 182302 (2004).
- 23) **(Ligou, 1997)** : Jacques Ligou, *Introduction au génie nucléaire*, Presses Polytechniques et universitaires romandes, 1997.
- 24) **(Marguet, 2011)** : Serge Marguet, *la physique des réacteurs nucléaires*, Editions TEC & DOC, 2011.
- 25) **(Reuss, 2003)** : Paul Reuss, *Précis de neutronique*, EDP Science, 2003.
- 26) **(Blanc, 1990)** : Daniel Blanc, *Les Rayonnements ionisants (détection, dosimétrie et spectrométrie)*, Masson, 1990.
- 27) **(Reuss, 2008)** : Paul Reuss, *Neutron physics*, EDP Science, 2008.
- 28) **(JEFF-3.1)**: JEFF-3.1, *Joint Evaluated Fission and Fusion (JEFF)*, Nuclear Data Library.
- 29) **(Delclaux et al, 2013)** : Mireille Coste-Delclaux, Cheikh Diop, Anne Nicolas, Bernard Bonin, *Neutronique*. CEA Saclay; Groupe Moniteur, 2013, E-den, Une monographie de la Direction de l'énergie nucléaire, CEA.
- 30) **(bussac et Reuss, 1985)** : Jean Bussac, Paul Reuss, *Traité de neutronique : physique et calcul des réacteurs nucléaires avec application aux réacteurs à eau pressurisée et aux réacteurs à neutrons rapides*, Hermann, 1985.
- 31) **(Verdier, 2005)** : Aude Verdier, *Evaluation de la sous-criticité lors des opérations de chargement d'un réacteur nucléaire REP*, thèse de doctorat, Université Claude Bernard Lyon-1, 2005.
- 32) **(Jammes, 1997)**: Christian Jammes, *Modélisation neutronique d'un cœur thermique compact et hétérogène en théorie du transport déterministe et probabiliste. Application au réacteur expérimental de l'université de Strasbourg*, thèse de doctorat, Université Louis Pasteur-Strasbourg, 1997.
- 33) **( Beckurts et Wirtz , 1964)**: Karl Heinrich Beckurts, Karl Wirtz, *Neutron physics*, Springer, 1964.
- 34) **(Zylaet et al, 2020)** : P.A. Zylaet al. (Particle Data Group), *Prog. Theor. Exp. Phys.*2020, 083C01, 2020.
- 35) **(Duderstadt et Hamilton, 1976)** : James J. Duderstadt, Louis J. Hamilton, *Nuclear reactor analysis*, JOHN WILEY & SONS, Inc., 1976.

- 36) **(Guérin, 2007)** : Pierre Guérin, *Méthodes de décomposition de domaine pour la formulation mixte duale du problème critique de la diffusion des neutrons*, thèse de doctorat, université Paris VI, 2007.
- 37) **(Berge, 2015)** : Léonie Berge, *Contribution à la modélisation des spectres de neutrons prompts de fission. Propagation d'incertitude à un calcul de fluence cuve*, thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2015.
- 38) **(Sardet, 2015)** : Alix Sardet, *Spectre en énergie des neutrons prompts de fission : optimisation du dispositif expérimental et application à l' $^{235}\text{U}$* , thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2015.
- 39) **(Bowman, 1998)**: Charles D. Bowman, *ACCELERATOR-DRIVEN SYSTEMS FOR NUCLEAR WASTE TRANSMUTATION*, Annu. Rev. Nucl. Part. Sci, vol 48, pp 505–556, 1998.
- 40) **(Bell et Glasstone, 1970)**: George I. Bell, Samuel Glasstone, *Nuclear reactor theory*, Van Nostrand Reinhold Company, 1970.
- 41) **(Lewis, 2008)**: Elmer E. Lewis, *Fundamentals of nuclear reactor physics*, AP, 2008.
- 42) **(Gould et al, 2006)** : C. R. Gould, E. I. Sharapov, S. K. Lamoreaux, *Time-variability of alpha from realistic models of Oklo reactors*, Phys. Rev. C 74, 1-24, 2006.
- 43) **(Petrov et al, 2005)**: Yu. V. Petrov, A. I. Nazarov, M. S. Onegin, V. Yu. Petrov, and É. G. Sakhnovskii, *Neutron physical calculation of a fresh zone in the natural nuclear reactor at Oklo*, Atomic Energy, Vol. 98, No. 4, 2005.
- 44) **(Bentridi et al, 2013)**: S.E. Bentridi, b. Gall, F. Gauthier-Lafaye, A. Seghour and D. Medjadi, *criticality of Oklo natural reactors: Realistic model of the reaction zone 9*, IEEE Transaction on Nuclear Science, vol 60, 278-283, 2013.
- 45) **(Gauthier-Lafaye, 1978)**: F. Gauthier-Lafaye, *Contrôle géologique de l'exploitation des zones de réaction 7 à 9, Oklo, Gabon*, Institut de Géologie, Université Louis Pasteur, Avril 1978 à Septembre 1978.
- 46) **(Openshaw et al, 1977)** : R. Openshaw, M. Pagel, B. Poty, *Phases fluides contemporaines de la diagenèse des grès, mouvements tectoniques et du fonctionnement des réacteurs nucléaires d'Oklo (Gabon)*, Proc. Tech. Comm. Meet. On natural fission reactor, Paris, France, Déc 19-21, 267-290, 1977.
- 47) **(Ibekwe et al, 2020)** : R.T. Ibekwe, C.M. Cooling, A.J. Trainer, *Modeling the short-term and long-term behaviour of the Oklo natural nuclear reactor phenomenon*, Progress in Nuclear Energy, 118 (2020).

- 48) **(Gauthier-Lafaye et al, 1977)** : F. Gauthier-Lafaye, Y. Besnus and F. Weber, *Données nouvelles sur l'environnement géologique des réacteurs naturels*, IAEA-TC-119/2 (1977).
- 49) **(Courant et Hilbert, 1989)**: Courant R. and Hilbert D, *Methods of Mathematical Physics*, John Wiley & Sons, 1989.
- 50) **(Weinberg et Wigner, 1958)**: A. M. Weinberg and E. P. Wigner, *The physical theory of neutron chain reactors*, the University of Chicago press, 1958.
- 51) **(Lamarsh et Baratta, 2001)**: IJ. R. Lamarsh, A. J. Baratta, *Introduction to nuclear engineering*, Prentice-Hall, Inc, 2001.
- 52) **(Stacey, 2007)**: W. M. Stacey, *Nuclear Reactor physics*, Wiley-VCH, 2007.
- 53) **(Jonathan et Walsh, 2017)**: Jonathan A. Walsh, 2017
- 54) **(Cherot, 1959)** : J. Cherot, *Etude neutronique de Melusine*, Rapport CEA N° 1205, Centre d'étude nucléaires de Saclay, 1959.
- 55) **(Goupy et Creighton, 2007)**: J. Goupy, L. Creighton, *Introduction aux plans d'expérience*, Dunod, 2007.
- 56) **(Linder, 2005)**: R. Linder, *Les plans d'expériences : Un outil indispensable à l'expérimentateur*, Presses de l'école nationale des Ponts et chaussées, 2005.
- 57) **(Karam, 2004)** : Sandrine Karam, *Application de la méthodologie des plans d'expériences et de l'analyse de données à l'optimisation des processus de dépôt*, thèse de doctorat, université de Limoges, 2004.
- 58) **(Rodrigues et Lemma, 2014)** : M.I. Rodrigues, A.F. Lemma, *Experimental design and process optimization*, CRC Press, 2014.
- 59) **(Tinsson, 2010)** : Walter Tinsson, *Plans d'expérience : Constructions et analyses statistiques*, Springer, 2010.
- 60) **(Gillon, 1997)** : Frédéric Gillon, *Modélisation et optimisation par plans d'expériences d'un moteur à commutations électroniques*, thèse de doctorat, Université de Lille, 1997.
- 61) **(Rabier, 2007)** : François Rabier, *Modélisation par la méthode des plans d'expériences du comportement dynamique d'un module IGBT utilisé en traction ferroviaire*, thèse de doctorat, l'Institut National Polytechnique de Toulouse, 2007.
- 62) **(Benoist, 1995)**: Daniel Benoist, Yves Tourbier, Sandrine Germain-Tourbier, *Plans d'expériences : construction et analyse*, Tec & Doc, 1995.
- 63) **(Montgomery, 2001)**: Douglas C. Montgomery, *Design and analysis of experiments*, JOHN WILEY & SONS, INC, 2001.

- 64) **(Collombier, 1996)** : Dominique Collombier, *Plans d'expérience factoriels : Construction et propriétés des fractions de plans*, Springer, 1996.
- 65) **(Box et al, 1960)**: G. E. P. Box, D. W. Behnken, *Some New Three Level Designs for the Study of Quantitative Variables*, Technometrics, vol 2, p 455-475, 1960.
- 66) **(Doehlert, 1970)** : David H. Doehlert, *Uniform Shell Designs*, Journal of the Royal Statistical Society, serie C, N° 19, 1970.
- 67) **(Eriksson et al , 2000)** : L. Eriksson, E. Johansson, N. Kettaneh-Wold, C. Wilkstrom, S. Wold, *Design of experiments, Principles and application*, Umetrics Academy, 2000.

## Liste des figures

Figure 1.1 La situation géographique du Gabon.....	8
Figure 1.2 Carte géologique des gisements d'uranium à Oklo.....	9
Figure 1.3 Stratigraphie du bassin de Franceville .....	11
Figure 1.4 La zone de réaction n°9 à Oklo .....	16
Figure 1.5 Réaction de fission nucléaire induite .....	18
Figure 1.6 Distribution des produits de fission en fonction de leurs masses atomiques : comparaison de l'uranium-235 et le plutonium-239 (Reuss, 2003).....	20
Figure 1.7 Spectre des neutrons de fission .....	21
Figure 1.8 Section efficace d'absorption neutronique en fonction de l'énergie.....	27
Figure 1.9 Section efficace de la réaction $(n, \alpha)$ sur le Bore 10.....	27
Figure 1.10 Section efficace de capture et de fission sur l'uranium 235 .....	28
Figure 1.11 Section efficace de capture et de fission sur l'uranium 238 .....	29
Figure 1.12 Section efficace de fission de $l^{235}\text{U}$ et $l^{238}\text{U}$ .....	29
Figure 1.13 Schéma de fonctionnement d'une centrale nucléaire de type REP.....	31
Figure 3.1 Modèle géométrique du cœur sans réflecteur .....	53
Figure 3.2 Modèle géométrique du cœur entouré de réflecteurs .....	54
Figure 3.3 Allures générales des fonctions de Bessel et la fonction $\cos(x)$ .....	64
Figure 4.1 Représentation du domaine d'étude pour deux facteurs.....	88
Figure 4.2 Présentation des variables codées.....	89
Figure 4.3 Plan composite centré à 2 et 3 facteurs.....	100
Figure 4.4 Exemple de diagramme des effets pour quatre facteurs.....	106
Figure 4.5 Exemple de courbe d'iso-réponse.....	106
Figure 4.6 Exemple de surface de réponse .....	106
Figure 5.1 Diagramme à barres des coefficients du modèle de la réponse $k_{\text{eff}}$ .....	115
Figure 5.2 Droite d'ajustement du modèle.....	118
Figure 5.3 Effets des facteurs $H, R, \Phi_T$ et $V_{\text{UO}_2}$ sur la criticité du réacteur ZR9.....	118
Figure 5.4 Effets des interactions entre facteurs sur la criticité du ZR9 .....	119
Figure 5.5 Courbes d'iso-réponses pour la criticité du ZR9 sans réflecteurs dans le plan: (a) rayon-épaisseur, (b) rayon-porosité, (c) rayon-teneur en uranium.....	123
Figure 5.6 Courbes d'iso-réponses pour la criticité du ZR9 sans réflecteurs à $R=156\text{cm}$ dans le plan:(a) épaisseur-porosité, (b) épaisseur- teneur en uranium .....	124
Figure 5.7 Courbe d'iso-réponse pour la criticité du ZR9 à $R = 156\text{ cm}$ et $H = 55\text{ cm}$ dans le plan: porosité-teneur en uranium.....	125
Figure 5.8 Courbe d'iso-réponse pour la criticité de ZR9 réfléchi dans le plan: (a) rayon-épaisseur, (b) rayon-porosité, (c) rayon-teneur en uranium.....	128
Figure 5.9 Courbe d'iso-réponse pour la criticité de ZR9 réfléchi dans le plan: (a) épaisseur-porosité, (b) épaisseur-teneur en uranium.....	128
Figure 5.10 Courbe d'iso-réponse pour la criticité de ZR9 réfléchi dans le plan porosité-teneur en uranium. ....	129

## Liste des tableaux

<i>Tableau 1.1 Valeurs de <math>E_0</math> et <math>\nu_0</math> pour des neutrons thermiques à la température <math>T</math></i>	22
<i>Tableau 1.2 Bilan énergétique en MeV de la fission induite par des neutrons sur différents noyaux lourds</i>	23
<i>Tableau 1.3 Les différentes interactions entre les neutrons et les noyaux</i>	25
<i>Tableau 2.1 Définition des grandeurs principales</i>	36
<i>Tableau 3.1 Composition chimique de la partie solide du minerai de la zone ZR9</i>	59
<i>Tableau 3.2 Fraction massique des composants du minerai pour différentes valeurs de porosité</i>	61
<i>Tableau 3.3 Sections efficaces microscopiques des éléments constituant le minerai</i>	68
<i>Tableau 3.4 Quelques configurations critique de la zone de réaction ZR9 sans réflecteurs avec <math>H = 70\text{cm}</math> et <math>V_{UO_2} = 5\%</math></i>	76
<i>Tableau 3.5 Différente fonctions nécessaire pour les calculs d'un cœur réfléchi en géométrie cylindrique</i>	81
<i>Tableau 3.6 valeurs des longueurs et des coefficients de diffusion pour le réflecteur latéral et axial</i>	82
<i>Tableau 4.1 Matrice d'expérience d'un plan factoriel pour 3 facteurs à 2 niveaux</i>	93
<i>Tableau 4.2 Matrice d'expérience avec termes d'interactions</i>	94
<i>Tableau 4.3 Matrice du modèle</i>	95
<i>Tableau 4.4 Matrice d'expérience d'un plan factoriel fractionnaire <math>2^{4-1}</math></i>	96
<i>Tableau 4.5 Matrice du modèle d'un plan fractionnaire <math>2^{4-1}</math></i>	98
<i>Tableau 4.6 Quelques valeurs de <math>\alpha</math> selon le critère de presque-orthogonalité</i>	101
<i>Tableau 4.7 Plan composite centré à deux facteurs</i>	102
<i>Tableau 4.8 Analyse de la variance</i>	104
<i>Tableau 5.1 Facteurs et domaine d'étude</i>	111
<i>Tableau 5.2 Matrice d'expérience du plan factoriel complet <math>2^4</math></i>	111
<i>Tableau 5.3 Matrice du modèle <math>X</math></i>	113
<i>Tableau 5.4 Résultats obtenus pour <math>k_{\text{eff}}</math> dans le cas d'un réacteur nu</i>	114
<i>Tableau 5.5 Valeur de la réponse au centre du domaine d'étude</i>	114
<i>Tableau 5.6 Coefficients du modèle</i>	115
<i>Tableau 5.7 Importance des coefficients du modèle</i>	116
<i>Tableau 5.8 Analyse de variance du modèle</i>	117
<i>Tableau 5.9 Domaine de variation des facteurs dans le cas d'un plan composite centre</i>	120
<i>Tableau 5.10 Matrice d'expérience complémentaire</i>	121
<i>Tableau 5.11 matrice du modèle pour un plan composite centré</i>	122
<i>Tableau 5.12 Résultats du plan en étoile</i>	121
<i>Tableau 5.13 Résultats de validation du modèle mathématique pour le réacteur ZR9 sans réflecteur</i>	125
<i>Tableau 5.14 Matrice d'expérience et résultats d'essais pour ZR9 réfléchi</i>	126
<i>Tableau 5.15 Coefficients du modèle mathématique</i>	127
<i>Tableau 5.16 Résultats de validation du modèle mathématique obtenu pour le réacteur ZR9 réfléchi</i>	129

---

## **Annexes**

---

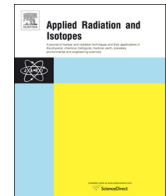




ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

## Applied Radiation and Isotopes

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/apradiso](http://www.elsevier.com/locate/apradiso)

## Criticality of the reaction zone 9 of Oklo reactors revisited

K. Mohamed Cherif<sup>a,\*</sup>, A. Seghour<sup>b</sup>, F.Z. Dehimi<sup>b</sup><sup>a</sup> *Faculté des Sciences de la matière, Université Batna 1, Batna, 05000, Algeria*<sup>b</sup> *Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, 02, Boulevard Frantz Fanon, B.P.399, Alger-Gare, Algiers, Algeria*

## HIGHLIGHTS

- The design of experiments method is used to analyse the criticality conditions of the Oklo natural reactor zone n°9.
- New sets of the reactor geometry, its uranium content and porosity are found for the RZ9 criticality occurrence.
- A good concordance is observed between the present method and the MCNP6 simulations.

## ARTICLE INFO

## Keywords:

Oklo reactor  
Criticality analysis  
Neutron diffusion equation  
Design of experiments

## ABSTRACT

New conditions on the occurrence of the criticality in Reaction Zone 9 (RZ9) of Oklo natural reactors (Gabon) are reported. Analytical expressions relating the effective neutron multiplication factor and the most influential parameters with respect to the fission chain reaction behaviour have been derived for two configurations of the reaction zone using the two-group diffusion theory. The dependence of the effective neutron multiplication factor on the thickness, the radius, the porosity and the uranium content of the reaction zone was investigated by means of the design of experiments method in order to establish a new set of limit values corresponding to critical configurations.

The developed method is validated through the verification of the criticality occurrence with the new set of parameters of a reaction zone model close to the real RZ9 configuration using the analytical calculations of the effective neutron multiplication factor and simulation results of the continuous energy Monte Carlo code MCNP6.

## 1. Introduction

The discovery of natural nuclear reactors at Oklo (Gabon) in 1972 (Bodu et al., 1972; Neuilly et al., 1972), which became known as the “Oklo phenomenon”, has generated an impressive number of studies in various fields of fundamental and applied research ranging from the investigation of the time-dependence of fundamental nuclear constants (Shlyakhter, 1976) to the performance assessment analysis for the geological disposal of nuclear waste (Petit, 1992).

Several studies have been conducted to find out geological, geochemical and size conditions suitable to start and sustain a nuclear fission chain reaction in a natural reactors (IAEA-International Atomic Energy Agency, 1975). The most detailed and extensive study of Oklo, with particular attention to neutron physics aspects, have been carried out by Naudet (1991) who investigated the effect of the age of the deposit, the uranium content and the volume of the reaction zone on the criticality occurrence in such natural systems.

However, the criticality occurrence in some reaction zones identified as small reactors, such as Reaction Zone 9 (RZ9), has remained an open question. Recently, the occurrence of criticality within the geological conditions in small sized natural reactors has been examined by the use of the sophisticated neutron physics code MCNP (Bentridi et al., 2011a, 2011b, 2013).

The critical configurations of RZ9 reactor are obtained within geological conditions of the Oklo deposits and solutions were given as isocritical lines where each point corresponds to a possible initial reaction zone in the geological context.

In the present work, we suggest a new approach to investigate the criticality occurrence conditions in RZ9 reactor using analytical expressions relating the effective neutron multiplication factor and the most influential parameters with respect to the fission chain reaction behaviour based on the two-group neutron diffusion theory. New set of limit values of relevant parameters for criticality occurrence are obtained through the application of the Design Of Experiments (DOE)

\* Corresponding author.

E-mail address: [khadidja.mohamedcherif@univ-batna.dz](mailto:khadidja.mohamedcherif@univ-batna.dz) (K.M. Cherif).<https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2019.04.018>

Received 12 September 2018; Received in revised form 15 April 2019; Accepted 16 April 2019

Available online 22 April 2019

0969-8043/ © 2019 Elsevier Ltd. All rights reserved.

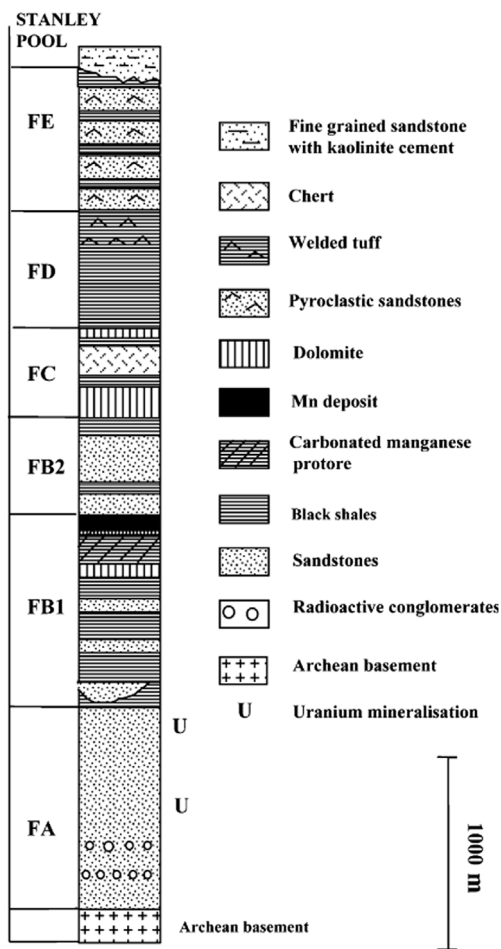


Fig. 1. Oklo deposit formation composites (Gauthier-Lafaye and Weber, 2003).

method.

## 2. The geological context of Oklo nuclear reaction zones

The significant increase of oxygen in atmosphere two billion years ago led to the formation of uranium deposits in the sedimentary Franceville basin in Gabon (Gauthier-Lafaye, 2002; Gauthier-Lafaye and Weber, 2003, 2006). This sedimentary is subdivided into five main formations labelled from A to E as shown in Fig. 1 (Gauthier-Lafaye et al., 1996; Gauthier-Lafaye and Weber, 2003). The FA formation is made of sandstones and conglomerates with thickness upper to 1000 m whereas the FB formation is composed of black shales and organic matter ranging in thickness between 300 and 1000 m, and the other formations FC, FD and FE have a volcano sedimentary character (Gauthier-Lafaye and Weber, 2003). All uranium deposits are located in FA formation in which they are well preserved in spite of the Paleoproterozoic age of the Franceville series.

Reaction zones were only found in Oklo-Okélobondo and Bangombé uranium deposits of the Franceville basin (see Fig. 2) (Gauthier-Lafaye et al., 1996; Gauthier-Lafaye and Weber, 2003; Gauthier-Lafaye, 2006), where fifteen reactors were located and numbered according to the chronological order of their discovery. All the fourteen reaction zones located in the Oklo-Okélobondo sectors have been totally mined out and only the Bangombé natural nuclear fission reactor is still preserved for further scientific studies of the behaviour of fission products and actinides in a geological environment (Gauthier-Lafaye and Weber, 2003).

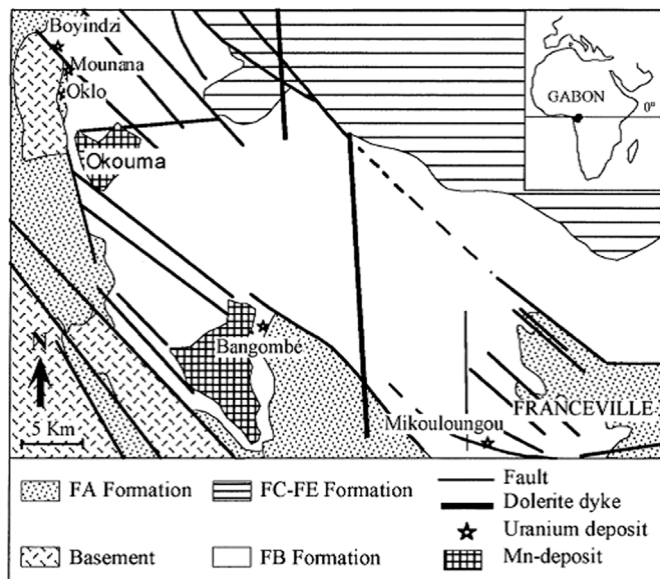


Fig. 2. Geological map of uranium deposits in Oklo (Gauthier-Lafaye et al., 1996).

### 2.1. Description of reaction zone 9

Reactor Zones (RZ) present thin lens shaped volumes with about 40° dip, extended along the geological layers. The RZ's size is quite variable from one zone to another. The biggest reactor RZ2 is a 12 m long, 18 m deep; and the thickness of the reactor core ranges between 20 and 50 cm, but may reach 1 m locally (Gauthier-Lafaye et al., 1996). The reactors were buried from 2 to 5 km below the surface of the earth during the time of their operation. At these depths, the temperature and the pressure are similar to the operating conditions of the Pressurized Water Reactors (PWR), (around 150°C and 200 bar respectively) (Naudet, 1991; Gauthier-Lafaye et al., 1996; Gauthier-Lafaye, 2002). The reactor cores are made from uraninite in the form of crystals embedded in clays (illite and chlorite). The uranium content in the reactor cores ranges between 20% and 80% and the porosity of the sandstones is about 20%–40% (Gauthier-Lafaye et al., 1996).

The RZ9 reactor (see Fig. 3) (Bentridi et al., 2011a) is one of three

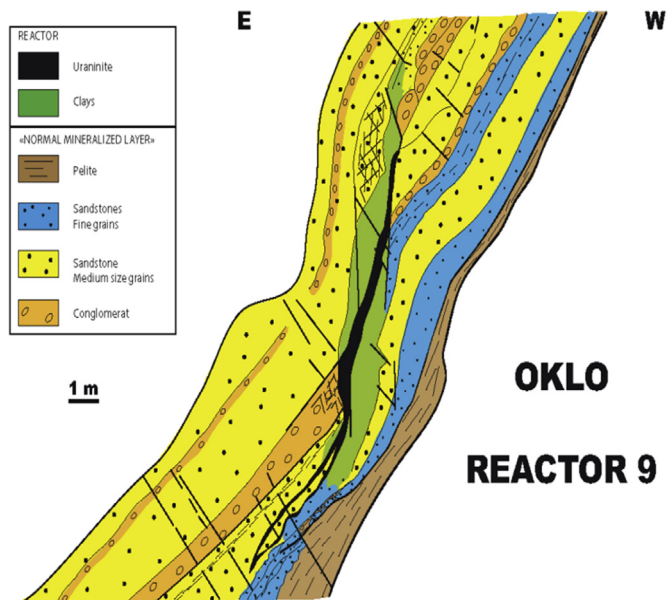


Fig. 3. Cross section of RZ9 reactor in Oklo deposit (Bentridi et al., 2011a).

reaction zones numbered 7, 8 and 9 which have been discovered by Gauthier Lafaye in the open pit of Oklo deposit in 1978 (Gauthier-Lafaye et al., 1996). RZ9 reactor has the shape of a few tens of centimetres thick lens spreading out on 7 m long and 12 m width.

The uranium content of the core ranges between 40% and 67% and the  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  ratio is locally as low as 0.56% (Hidaka and Gauthier-Lafaye, 2000; Gauthier-Lafaye et al., 1996; Loss et al., 1988). Loss (Loss et al., 1988) has shown that although it is unlikely that the Oklo reactors operated continuously, the duration of criticality in Zone 9 was approximately  $2.2 \times 10^5$  years. During this operating period, the integrated neutron flux was calculated to be approximately  $3.6 \times 10^{20}$  n  $\text{cm}^{-2}$  and the average fission density was estimated to  $0.92 \times 10^{20}$  fissions  $\text{cm}^{-3}$  (Loss et al., 88). Compared to commercial nuclear reactors which often have powers as large as hundreds of thousands of kilowatts, the RZ9 reactor was operating at a power of a few hundred watts.

## 2.2. Analytical models of reaction zone 9

In most of the works on Oklo natural reactors, the geometries of the reaction zones were approximated as a cylindrical reactor core surrounded by a thick reflector (Gould et al., 2006; Petrov et al., 2006; Bentridi et al., 2013). According to the chemical analysis performed on various samples from the RZ9 core, the ore sample was defined by two main volumes: a fluid volume and a solid volume. The fluid volume is supposed to be made only from water under Oklo pressure and temperature conditions and the solid volume is considered as a homogeneous mixture of uranium and gangue, made of 90% silica and 10% clay (illite and chlorite) (Bentridi et al., 2011a).

In the present work, the same cylindrical geometry is adopted to model RZ9 reactor. Similarly to the previous studies on the RZ9 modelling and simulation (Bentridi et al., 2011b), we consider two configurations: a hypothetical model of a reactor core without reflectors and a more realistic model where the reactor core is surrounded by reflectors. Calculations are performed for a fresh reactor core when it reached criticality with a natural abundance of  $^{235}\text{U}$  of 3.7%.

**2.2.2. Reactor core without reflectors** In a first approach, we consider a cylindrical reactor core without reflectors as shown in Fig. 4. By applying the two-group diffusion theory (Lamarsh and Baratta, 2001; Lewis, 2008), for a stationary neutron flux  $\phi$  the following system of equations holds:

$$\begin{aligned} D_1 \Delta \phi_1 - \Sigma_f \phi_1 + \frac{k_{\infty} \Sigma_a}{\beta k_{\text{eff}}} \phi_2 &= 0 \\ D_2 \Delta \phi_2 - \Sigma_a \phi_2 + P \Sigma_f \phi_1 &= 0 \end{aligned} \quad (1)$$

where  $\phi_1$  and  $\phi_2$  are the fast and thermal fluxes respectively.  $D_1$  and  $D_2$  are respectively the fast and the thermal diffusion coefficients.  $\Sigma_a$  is the thermal absorption macroscopic cross section and  $\Sigma_f$  is the removal macroscopic cross section,  $k_{\infty}$  is the infinite multiplication factor and  $P$  is the resonance escape probability.

The flux must be finite and positive. In addition the flux must reflect the geometrical symmetries and satisfies the boundary conditions:  $\phi(R, z) = 0$  and  $\phi\left(r, \frac{\pm H}{2}\right) = 0$  with  $0 \leq r \leq R$  and  $-\frac{H}{2} \leq z \leq \frac{H}{2}$ .

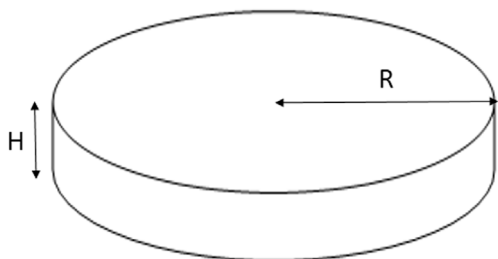


Fig. 4. Geometrical model of RZ9 reactor without reflectors.

In this case the effective multiplication factor  $k_{\text{eff}}$  is given by:

$$k_{\text{eff}} = \frac{k_{\infty}}{(1 + B^2 L_1^2)(1 + B^2 L_2^2)} \quad (2)$$

where  $L_1$  and  $L_2$  are respectively the fast and thermal diffusion lengths.  $B$  is the geometrical buckling expressed by:

$$B^2 = \left(\frac{\pi}{H}\right)^2 + \left(\frac{2.405}{R}\right)^2$$

The infinite multiplication factor  $k_{\infty}$  is given by the so-called four factor formula:

$$k_{\infty} = \eta \epsilon f P$$

where  $\eta$ ,  $\epsilon$ ,  $f$  and  $P$  are respectively the thermal fission, the fast fission, the thermalization factor and the resonance escape probability.

The parameters  $\eta$ ,  $\epsilon$ ,  $f$  and  $P$  are related to the macroscopic cross sections and to the atomic density of the reactor ore. To calculate these parameters, one needs to define the material composition of the reactor ore. According to the adopted model in this case, the uraninite is defined as volume fraction  $V_{UO_2}$  giving the  $UO_2$  volume per 1  $\text{cm}^3$  of ore sample. The fluid is defined as the total apparent porosity  $\Phi_T$  (Bentridi et al., 2011a; 2011b, 2013).

For each value of  $V_{UO_2}$  and  $\Phi_T$ , the mass fractions of uraninite, fluid and gangue are calculated using the following expressions:

$$\begin{aligned} f_{UO_2} &= V_{UO_2} \times \rho_{UO_2} \\ f_{\text{fluid}} &= \Phi_T \times \rho_{\text{fluid}} \\ f_{\text{gangue}} &= (1 - \Phi_T - V_{UO_2}) \times \rho_{\text{gangue}} \end{aligned}$$

where  $\rho$  denotes the density ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ).

Consequently, it is possible now to relate the effective multiplication factor with four relevant parameters  $H$ ,  $R$ ,  $\Phi_T$  and  $V_{UO_2}$ . For comparison purpose, calculation results of  $k_{\text{eff}}$  for some critical configurations of the active reactor with  $H = 70\text{cm}$  and  $V_{UO_2} = 5\%$ , are listed in Table 1 together to those obtained by Monte Carlo simulations by Bentridi et al. (Bentridi et al., 2011a).

### 2.2.3. Reactor core with reflectors

In order to make the model more realistic, we took into account the presence of reflectors as shown in Fig. 5. We assumed that the cylindrical core is surrounded by finite lateral and axial reflectors. The lateral reflector is a tube with height  $H$ , inner radius  $R$  and thickness  $d$  whereas the axial reflectors are two cylinders with height  $H = d$  and radius  $R$ , which is not extended until the outer radius of the lateral reflector ( $R + d$ ). In fact, to avoid unnecessary complications of the problem calculation, implied by axial and lateral reflectors interaction terms we have ignored the effect of the corners to make possible analytical solution based on the two-group diffusion theory.

The diffusion equation systems written for both inner core and surrounding reflectors are:

In the core

$$\begin{aligned} D_{1c} \Delta \phi_{1c} - \Sigma_f \phi_{1c} + \frac{k_{\infty} \Sigma_a}{\beta k_{\text{eff}}} \phi_{2c} &= 0 \\ D_{2c} \Delta \phi_{2c} - \Sigma_a \phi_{2c} + P \Sigma_f \phi_{1c} &= 0 \end{aligned} \quad (3)$$

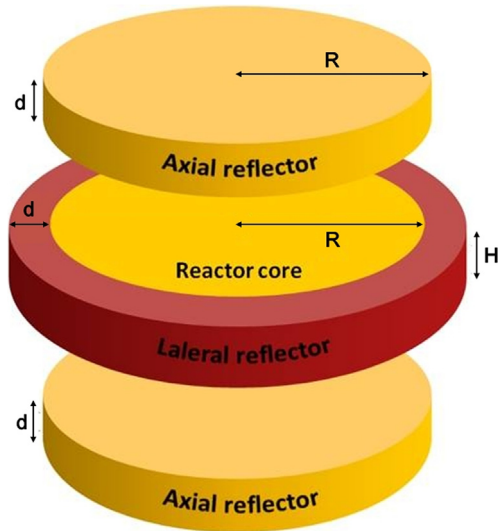
and in the reflector:

$$\begin{aligned} D_{1r} \Delta \phi_{1r} - \Sigma_{fr} \phi_{1r} &= 0 \\ D_{2r} \Delta \phi_{2r} - \Sigma_{ar} \phi_{2r} + \Sigma_{fr} \phi_{1r} &= 0 \end{aligned} \quad (4)$$

These equation systems are solved with respect to the boundary conditions in which the flux in the core is finite at  $r = 0$ . In the lateral reflector the flux vanishes at  $r = R + d$  and  $z = \frac{H}{2}$ . For the axial reflector it vanishes at  $r = R$  and  $z = \frac{H}{2} + d$ , where  $d$  is the thickness of both axial and lateral reflectors. The obtained solutions for the equation system 3 are a linear combination of Laplace's equation solutions in the cylindrical geometry.

**Table 1**  
Some critical configurations of the active reactor with  $H = 70.0\text{cm}$  and  $V_{\text{UO}_2} = 5\%$ .

	Expression	$\Phi_T = 25\%$	$\Phi_T = 27.5\%$	$\Phi_T = 30\%$	$\Phi_T = 32.5\%$	$\Phi_T = 35\%$	$\Phi_T = 37.5\%$	$\Phi_T = 40\%$
Radius (cm)	R	330	168	130	110	98	91	84
Bentridi et al. (2011a)								
Fast fission factor	$\epsilon = 1$	1	1	1	1	1	1	1
Thermal utilization factor	$f = \frac{\Sigma_a(\text{fuel})}{\Sigma_a(\text{total})}$	0.707	0.701	0.695	0.689	0.683	0.678	0.672
Resonance escape probability	$P = e^{-\left(\frac{N_{238}I_{\text{eff}}}{\epsilon_{\text{avg}}\Sigma_{\text{sth}}}\right)}$	0.870	0.878	0.885	0.891	0.896	0.900	0.905
Thermal fission factor	$\eta = \nu \frac{\Sigma_f(\text{fuel})}{\Sigma_a(\text{fuel})}$	2.070	2.070	2.070	2.070	2.070	2.070	2.070
Fast diffusion length (cm <sup>2</sup> )	$L_1^2 = \frac{D_1}{\Sigma_F}$	81.78	75.84	70.66	66.11	62.07	58.47	55.22
Thermal diffusion length (cm <sup>2</sup> )	$L_2^2 = \frac{D_2}{\Sigma_a}$	26.80	25.80	24.90	24.00	23.10	22.40	21.60
Fast diffusion coefficient (cm)	$D_1 = \frac{1}{3\Sigma_{lr}(\text{fast})}$	0.99	0.98	0.96	0.94	0.92	0.90	0.89
Thermal diffusion coefficient (cm)	$D_2 = \frac{1}{3\Sigma_{lr}(\text{thermal})}$	0.84	0.81	0.79	0.77	0.75	0.73	0.71
Thermal absorption cross section (cm <sup>-1</sup> )	$\Sigma_a$	$3.12 \times 10^{-2}$	$3.15 \times 10^{-2}$	$3.17 \times 10^{-2}$	$3.20 \times 10^{-2}$	$3.23 \times 10^{-2}$	$3.25 \times 10^{-2}$	$3.28 \times 10^{-2}$
Thermal transport cross section (cm <sup>-1</sup> )	$\Sigma_{lr}(\text{thermal})$	0.40	0.41	0.42	0.43	0.45	0.46	0.47
Fast transport cross section (cm <sup>-1</sup> )	$\Sigma_{lr}(\text{fast})$	0.33	0.34	0.35	0.36	0.36	0.37	0.38
Effective multiplication factor	$k_{\text{eff}}$ (Eq. (2))	1.029	1.028	1.028	1.029	1.030	1.025	1.026



**Fig. 5.** Geometrical model of RZ9 reactor with reflectors.

$$\begin{aligned} \phi_{1c} &= AX(r, z) + CY(r, z) \\ \phi_{2c} &= S_1AX(r, z) + S_2CY(r, z) \end{aligned} \tag{5}$$

In which

$$\begin{aligned} \Delta X + \mu^2 X &= 0 \\ \Delta Y - \nu^2 Y &= 0 \end{aligned}$$

For the reflector the obtained solutions are given by:

$$\begin{aligned} \phi_{1r} &= FZ(r, z) \\ \phi_{2r} &= S_3FZ(r, z) + GW(r, z) \end{aligned} \tag{6}$$

where  $S_1$  and  $S_2$  are the coupling coefficients between the fluxes in the core and  $S_3$  are the coupling coefficient between the fluxes in the reflector. A, C, F and G are constants. The expressions for the coupling coefficients are:

$$\begin{aligned} S_1 &= \frac{(PD_{1c}) / L_{1c}^2}{\mu^2 D_{2c} + \Sigma_a} \\ S_2 &= \frac{(PD_{1c}) / L_{1c}^2}{\Sigma_a - \nu^2 D_{2c}} \\ S_3 &= \frac{D_{1r} / D_{2r}}{(L_{1r}^2 / L_{2r}^2) - 1} \end{aligned}$$

$X(r, z)$  and  $Y(r, z)$  are expressed as follows:

$$\begin{aligned} X(r, z) &= J_0(\alpha_1 r) \cos(\beta z) \\ Y(r, z) &= I_0(\alpha_2 r) \cos(\beta z) \end{aligned} \tag{7}$$

The parameters  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  and  $\beta$  are related by the following system of equations:

$$\begin{aligned} \alpha_1^2 + \beta^2 &= \mu^2 \\ \alpha_2^2 - \beta^2 &= \nu^2 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mu^2 &= \frac{-M^2 + \sqrt{M^4 + 4L_{1c}^2 L_{2c}^2 \left(\frac{k_{\infty}}{k_{\text{eff}}} - 1\right)}}{2L_{1c}^2 L_{2c}^2} \\ \nu^2 &= \frac{-M^2 - \sqrt{M^4 + 4L_{1c}^2 L_{2c}^2 \left(\frac{k_{\infty}}{k_{\text{eff}}} - 1\right)}}{2L_{1c}^2 L_{2c}^2} \\ M^2 &= L_{1c}^2 + L_{2c}^2 \end{aligned}$$

For the lateral reflector  $Z(r, z)$  and  $W(r, z)$  are expressed as follows:

$$\begin{aligned} Z(r, z) &= \left[ I_0(\epsilon_1 r) - \frac{J_0(\epsilon_1(R+d))}{K_0(\epsilon_1(R+d))} K_0(\epsilon_1 r) \right] \\ W(r, z) &= \left[ I_0(\epsilon_2 r) - \frac{J_0(\epsilon_2(R+d))}{K_0(\epsilon_2(R+d))} K_0(\epsilon_2 r) \right] \end{aligned} \tag{8}$$

where  $\epsilon_1$  and  $\epsilon_2$  are respectively related to the fast and thermal diffusion lengths  $L_{1r}$  and  $L_{2r}$  in the reflector, they are given by:

$$\begin{aligned} \epsilon_1^2 - \left(\frac{\pi}{H}\right)^2 &= \frac{1}{L_{1r}^2} \\ \epsilon_2^2 - \left(\frac{\pi}{H}\right)^2 &= \frac{1}{L_{2r}^2} \end{aligned}$$

$I_0$  and  $K_0$  are the zero order modified Bessel functions of the first and the second kind.  $J_0$  is the zero order Bessel functions of the first kind. For an order  $n$ ,  $I_n$  and  $K_n$  respectively are both solutions of the modified Bessel differential equation:

$$x^2 \frac{d^2 y}{dx^2} + x \frac{dy}{dx} - (n^2 + x^2)y = 0$$

While the Bessel functions  $J_n$  are solutions of the Bessel differential equation:

$$x^2 \frac{d^2 y}{dx^2} + x \frac{dy}{dx} + (-n^2 + x^2)y = 0$$

For the axial reflector,  $Z(r, z)$  and  $W(r, z)$  are expressed as follows:

$$\begin{aligned}
 Z(r, z) &= J_0\left(\frac{2.405}{R}r\right)sh\left[\Omega_1\left(\frac{H}{2} + d - z\right)\right] \\
 W(r, z) &= J_0\left(\frac{2.405}{R}r\right)sh\left[\Omega_2\left(\frac{H}{2} + d - z\right)\right]
 \end{aligned}
 \tag{9}$$

where:

$$\begin{aligned}
 \Omega_1^2 - \left(\frac{2.405}{R}\right)^2 &= \frac{1}{L_{1r}^2} \\
 \Omega_2^2 - \left(\frac{2.405}{R}\right)^2 &= \frac{1}{L_{2r}^2}
 \end{aligned}$$

The continuity conditions of currents and fluxes at the interface between the core and the reflectors are treated separately for the core and the axial reflector on the one hand, and for the core and the lateral reflector on the other hand. This leads to the following equations:

$$\begin{aligned}
 \phi_{1c} &= \phi_{1r} \\
 \phi_{2c} &= \phi_{2r} \\
 D_{1c} \nabla \phi_{1c} &= D_{1r} \nabla \phi_{1r} \\
 D_{2c} \nabla \phi_{2c} &= D_{2r} \nabla \phi_{2r}
 \end{aligned}
 \tag{10}$$

When this system of equations is applied, we obtain a homogeneous algebraic system of four equations of each case, that we can write them in the form of a matrix (4 × 4). The determinant of each matrix must be zero. This leads to solve the following equations in order to obtain  $k_{eff}$  with the condition  $\alpha_1^2 + \beta^2 = \mu^2$  using a numerical program written in Wolfram Mathematica 9.

$$\begin{aligned}
 \Delta(\alpha_1, k_{eff}) &= 0 \\
 \Delta(\beta, k_{eff}) &= 0
 \end{aligned}
 \tag{11}$$

The determinant of the obtained homogeneous system is written as follows:

$$\Delta = \begin{vmatrix} X & Y & -Z_1 & 0 \\ S_1X & S_2Y & -S_3Z_1 & -Z_2 \\ D_{1c}X' & D_{2c}Y' & -D_{1r}Z_1' & 0 \\ D_{2c}S_1X' & D_{2c}S_2Y' & -D_{2r}S_3Z_1' & -D_{2r}Z_2' \end{vmatrix} = 0$$

Since, by definition, the reflectors are considered poor in uranium, they are considered without uranium in our study as a first approach. For the lateral reflector, the porosity could be taken to be 15% and only 10% for the axial reflectors (Bentridi et al., 2011a, 2011b). Furthermore, because the thickness of the lateral reflector, is at least four times the thermal and fast neutron diffusion length (respectively  $L_{2r} = 12.60cm$  and  $L_{1r} = 11.01cm$ ), we can consider  $d = H$  without lack of precision.

### 2.3. Design of experiments method

In the aim to obtain an optimal set of relevant parameters  $H, R, \Phi_T$  and  $V_{UO_2}$  leading to  $k_{eff} = 1$  we have used the design of experiments method (DOE).

The design of experiments is a statistical and mathematical method that allows to model, optimize and analyse simultaneously the effect of input variables called factors on an output variable called response (Karam, 2004; Goupy and Creighton, 2007). The DOE method is more suitable for the examination of the individual and interactive effects of various factors that can influence the response, and offers an effective tool for the determination of the most important factors through a screening investigation approach. Furthermore, it has the main advantage of minimizing the number of tests to obtain more information with fewer experiments. This makes the DOE method much less consuming of computing time than the classical method with one-variable-at-a-time which requires to explore all possible combinations of tests.

In our study, two types of experimental design were used. The first design employed the factorial design for the screening of the relevant factors that are the thickness  $H$ , the radius  $R$ , the porosity  $\Phi_T$  and the uranium content  $V_{UO_2}$ , and their interactive effects. The second design is

the response surface design which has been finally applied to determine the values of previous factors that lead to  $k_{eff} = 1$ .

In the case of the factorial design, the  $2^l$  design is used in the present study. Each relevant factor is assigned by two levels, denoted low (-1) and high (+1) and  $l$  is the number of factors. The chosen mathematical model here is a linear one with second order interactions including a central response value as a constant, factor effect terms as  $X_i$  and interaction effect terms as  $X_iX_j$ :

$$Y = b_0 + \sum_{i=1}^n b_i X_i + \sum_{i<j}^n b_{ij} X_i X_j
 \tag{12}$$

where  $X_i$  denote the dimensionless factor variable or a coded value of the given factor, defined by:

$$X_i = \frac{x_i - x_0}{\Delta_i}$$

where  $x_0$  is a central value of the factor defined on a given interval and  $\Delta_i = \max |x_i - x_0|$  the step range which is the maximal step change for each factor domain.

The response surface methodology is a second degree model with second order interaction factors given by a second degree polynomial equation. This model can be obtained from a  $2^l$  factorial design model by adding the quadratic terms:

$$Y = b_0 + \sum_{i=1}^n b_i X_i + \sum_{i<j}^n b_{ij} X_i X_j + \sum_{i=1}^n b_{ii} X_i^2
 \tag{13}$$

In practice,  $2^l$  experiments are first performed for all levels of the  $l$  factors. The obtained responses are used to evaluate the coefficients  $b_0, b_i$  and  $b_{ij}$  of the linear model with interactions by means of a regression analysis. The influence of the  $X_iX_j$  interaction effects on the response are determined by a p-value statistical test of the regression coefficients.

In a second step, additional experiments are performed for  $2l$  axial points assigned with  $-\alpha$  and  $+\alpha$  coded values and  $n_0$  central points (Goupy and Creighton, 2007). The response surface model is then adopted using Equation (12) where the  $X_iX_j$  interaction terms with insignificant effects are discarded. The new corresponding coefficients  $b_0, b_i$  and  $b_{ij}$  are evaluated using the complete  $2^l + 2l + n_0$  experimental data. Finally, the obtained equation is used to determine the predicted response for the missing factors.

In the present work, the considered four relevant parameters for the criticality analysis of a natural reactor are: the thickness  $H$  of the reactor core, its radius  $R$ , the uranium content  $V_{UO_2}$  and the porosity  $\Phi_T$ . The corresponding coded and real levels are listed in Table 2.

Two expressions of  $k_{eff}$  given by Eq. (2) and Eq. (11) obtained respectively for the case of a reactor core without reflectors and a reactor core with reflectors are treated separately.

### 2.4. The case of a fresh reactor core without reflectors

As a first application, we start with the case of a fresh reactor core without reflectors. Taking into account the four considered factors, 16 evaluations of  $k_{eff}$  using Eq. (2) are performed according to the linear model with second order interaction terms, and the obtained results are summarized in Table 3.

As already discussed, the coefficients  $b_0, b_i$  and  $b_{ij}$  are determined using a linear regression analysis. The obtained results are shown in

**Table 2**  
Factors and study domain for RZ9 reactor.

Level	Thickness (cm)	Radius (cm)	Porosity (%)	Uranium Contents (%)
-1	50	40	20	4
0	75	120	30	5.5
1	100	200	40	7

**Table 3**  
Full factorial design and results of the responses.

Run number	Coded values of factors				Natural values of factors				Response $k_{eff}$
	$X_1$	$X_2$	$X_3$	$X_4$	$H$	$R$	$\Phi_T$	$V_{UO_2}$	
1	-1	-1	-1	-1	50	40	20	4	0.548149
2	1	-1	-1	-1	100	40	20	4	0.715022
3	-1	1	-1	-1	50	200	20	4	0.751771
4	1	1	-1	-1	100	200	20	4	1.04012
5	-1	-1	1	-1	50	40	40	4	0.68938
6	1	-1	1	-1	100	40	40	4	0.832792
7	-1	1	1	-1	50	200	40	4	0.862118
8	1	1	1	-1	100	200	40	4	1.06948
9	-1	-1	-1	1	50	40	20	7	0.63422
10	1	-1	-1	1	100	40	20	7	0.804575
11	-1	1	-1	1	50	200	20	7	0.841504
12	1	1	-1	1	100	200	20	7	1.12574
13	-1	-1	1	1	50	40	40	7	0.825632
14	1	-1	1	1	100	40	40	7	0.976491
15	-1	1	1	1	50	200	40	7	1.00694
16	1	1	1	1	100	200	40	7	1.21898

**Table 4**  
Significance of model coefficients.

Term	Coefficient	p-Value
$b_0$	0.871	0.000
$b_1$	0.102	0.000
$b_2$	0.118	0.000
$b_3$	0.064	0.000
$b_4$	0.058	0.000
$b_{12}$	0.023	0.000
$b_{13}$	-0.012	0.011
$b_{14}$	0.001	0.828
$b_{23}$	-0.014	0.007
$b_{24}$	0.001	0.791
$b_{34}$	0.014	0.007
$r^2$	0.998	

**Table 4.** Each coefficient value is given with its standard deviation and the p-value which represents the probability that indicate whether or not the considered coefficient is significant. For a fixed acceptance p-value at 0.01, we observe that the interactions between thickness and porosity, thickness and uranium content, radius and uranium content are insignificant and negligible because they have a p-value greater than 0.01. According to this p-value test,  $X_1X_3$ ,  $X_1X_4$  and  $X_2X_4$  interaction effect terms are removed from Eq. (12). To monitor the quality of the model, we have used the coefficient of determination  $r^2$  which represents the ratio between the sum of squares of the predicted responses and the sum of squares of the calculated responses (Goupy and Creighton, 2007). The best model is defined with a value of  $r^2 = 1$ . If the value of  $r^2$  approaches zero, the predictive power of the model is too low. From Table 4, we can see that  $r^2 = 0.998$ ; which indicates that the model is significant.

In the response surface design model analysis, we choose  $n_0 = 1$  which implies  $\alpha = 1.41$  (Goupy and Creighton, 2007). Using the additional central point and the 8 axial points, the second order polynomial equation is expressed by:

$$\begin{aligned}
 Y &= 0.946 \\
 &+ 0.108X_1 + 0.167X_2 + 0.062X_3 + 0.059X_4 \\
 &+ 0.022X_1X_2 - 0.014X_2X_3 + 0.014X_3X_4 \\
 &+ 0.011X_1^2 - 0.183X_2^2 + 0.045X_3^2 + 0.046X_4^2
 \end{aligned}$$

This model allows us to draw the contour plots in order to get the critical value of  $k_{eff}$ . Fig. 6 shows the contour plots of the response as a function of radius and thickness, radius and porosity, and radius and uranium content. In each case, the two other factors are kept at fixed values. In Fig. 6 a, the porosity is fixed at  $\Phi_T = 30\%$  and the uranium

content at  $V_{UO_2} = 5\%$ . In Fig. 6 b, the thickness and the uranium content are respectively  $H = 70cm$  and  $V_{UO_2} = 5\%$ . In Fig. 6 c, the thickness and the porosity values are fixed at  $H = 70cm$  and  $\Phi_T = 30\%$ .

We can observe from Fig. 6, that in the critical region, for  $k_{eff} = 1$ , the flexion values of the radius  $R$  of the reactor core are respectively  $R = 157.6cm$ ,  $R = 154.4cm$  and  $R = 156.0cm$  which leads to mean value of about  $R = 156cm$ . We can also note that for a reactor core with a radius ranging from  $R = 114cm$  to  $R = 191cm$ , the criticality is always reached given that  $H \geq 81cm$ ,  $\Phi_T \geq 36\%$  and  $V_{UO_2} \geq 6\%$ . Moreover, let us consider the behaviour of the criticality for a reactor core with the mean value of  $R = 156cm$ . To this end, we draw the contour plots of the response  $k_{eff}$  as function of thickness and porosity (see Fig. 7 a) then, thickness and uranium content (see Fig. 7 b). For smallest thickness  $H = 55cm$ , one can observe that the criticality may occur at high porosity and uranium content,  $\Phi_T \geq 40\%$  and  $V_{UO_2} \geq 7\%$ . To find under which porosity and uranium concentration we can obtain criticality at  $H = 55cm$  and  $R = 156cm$ , a contour plot of the response is drawn (see Fig. 8). We can observe that criticality can be achieved at  $\Phi_T$  ranges between 30% and 40%, and  $V_{UO_2}$  ranges between 5.5% and 7%.

To verify the analytical calculation of  $k_{eff}$ , our results are compared to those obtained with the continuous energy Monte Carlo code MCNP (Brewer, 2009) under the same geometrical and physical conditions of the reactor core. The criticality calculations were performed using MCNP6 by means of the criticality control card KCODE and the evaluated neutron data file library ENDF/B-VI.6., using 3000 cycles with 10000 neutron histories per cycle. The first 150 cycles were skipped before  $k_{eff}$  data tallying begins. The  $S(\alpha, \beta)$  thermal neutron scattering for light water has been considered in these runs. From Table 5, it can be seen that the most of obtained results by the response surface methodology are quite similar to those obtained by MCNP6 code.

### 2.5. The case of a fresh reactor core with reflectors

Following the same approach as in the case of a fresh core without reflectors, the response surface methodology was applied to the case of a fresh reactor core with reflectors. Using Eq. (11), we express the second order polynomial equation of the response function by:

$$\begin{aligned}
 Y &= 1.0238 + 0.067X_1 + 0.131X_2 + 0.043X_3 + 0.056X_4 \\
 &+ 0.001X_1X_2 - 0.009X_2X_3 + 0.009X_3X_4 \\
 &+ 0.034X_1^2 - 0.140X_2^2 + 0.037X_3^2 + 0.041X_4^2
 \end{aligned}$$

This model allows us to draw the 2-D contour plots shown in Fig. 9, Fig. 10 and Fig. 11. One can observe that in the critical region, for the lower values of thickness (see Fig. 9 a), porosity (see Fig. 9 b) and uranium content (see Fig. 9 c), the values of the radius  $R$  of the reactor

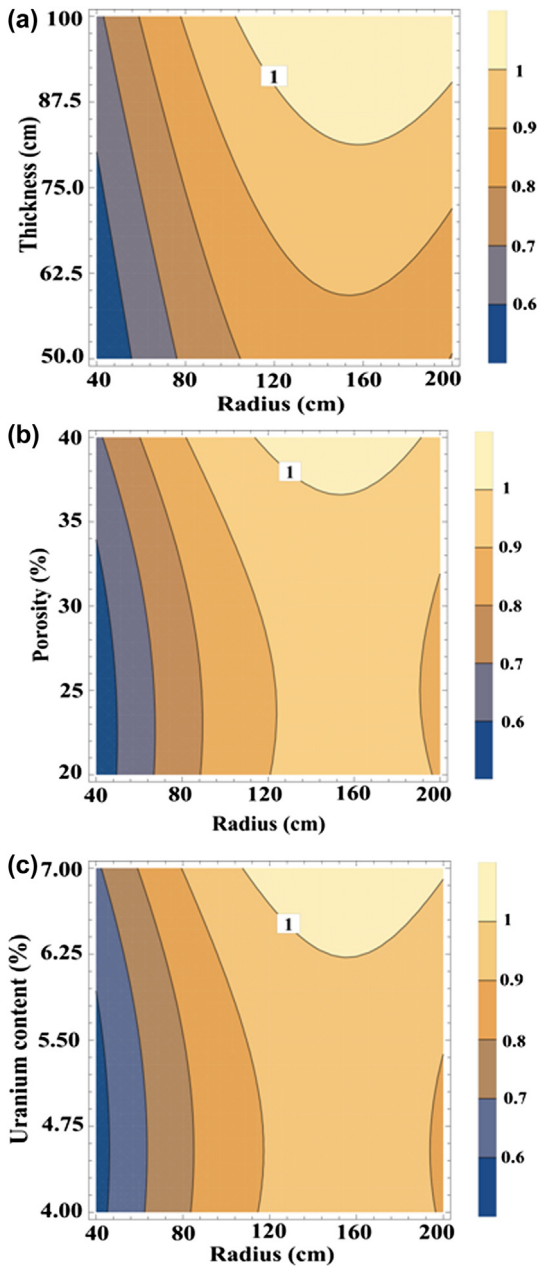


Fig. 6. Contour plots of the combined effect of: (a) Radius and Thickness, (b) Radius and Porosity, (c) Radius and Uranium content, on the criticality in RZ9 reactor without reflectors.

core are respectively  $R = 140\text{cm}$ ,  $R = 123.5\text{cm}$  and  $R = 122.5\text{cm}$  with a mean value of about  $R = 128\text{cm}$ . The criticality occurs for any configuration with  $R \geq 128\text{cm}$ . Furthermore, the criticality is still possible for a thin reactor core with  $H = 50\text{cm}$  and  $R = 128\text{cm}$ , given that the porosity ranges between 20% and 35% and the uranium content ranges between 4% and 5.8% as shown in Fig. 11.

As expected, one can observe that the presence of the reflectors leads to induce criticality with reduced dimensions of the reactor core and less porosity and uranium content as in the reactor core without reflector configuration. These results have been compared to those obtained by MCNP6 calculation as shown in Table 6.

### 3. Conclusion

Using the design of experiments method, the influence of the considered relevant parameters on the criticality in RZ9 case is studied. The

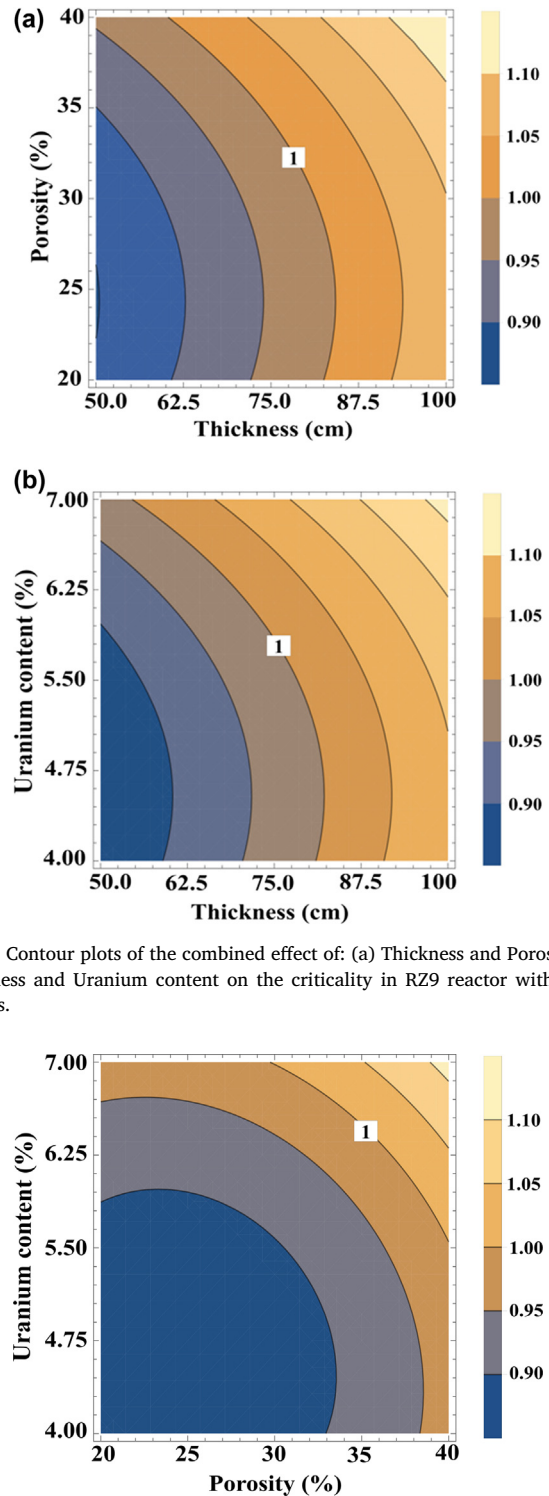


Fig. 7. Contour plots of the combined effect of: (a) Thickness and Porosity, (b) Thickness and Uranium content on the criticality in RZ9 reactor without reflectors.

Fig. 8. Contour plots of the combined effect of porosity and uranium content on the criticality in RZ9 reactor without reflectors.

use of the DOE method allowed us to establish new limit conditions on the occurrence of the criticality according to previous model in recent works about the criticality of RZ9. Two configurations were considered: a reactor core without reflectors as a theoretical case to test the analytical approach and another configuration closer to a realistic situation, in which the effect of the surrounding environment of the reaction zone is considered by introducing reflectors media. In the last case, some new limit values are obtained for possible solutions in the range of

**Table 5**  
Confirmation of the validity of model for RZ9 reactor without reflectors.

Thickness (cm)	Radius (cm)	Porosity (%)	Uranium content (%)	Response ( $k_{eff}$ )		
				Predicted	Calculated by Eq. (2)	Calculated by MCNP6
55	156	40	5.55	1	0.9929	0.9898
55	156	37	6.25	1	1.0012	1.0020
70	192	40	5	1	1.0562	1.0418
82	156	30	4	1	1.0299	1.0056
87.5	192	30	4.33	1	1.0347	1.0205

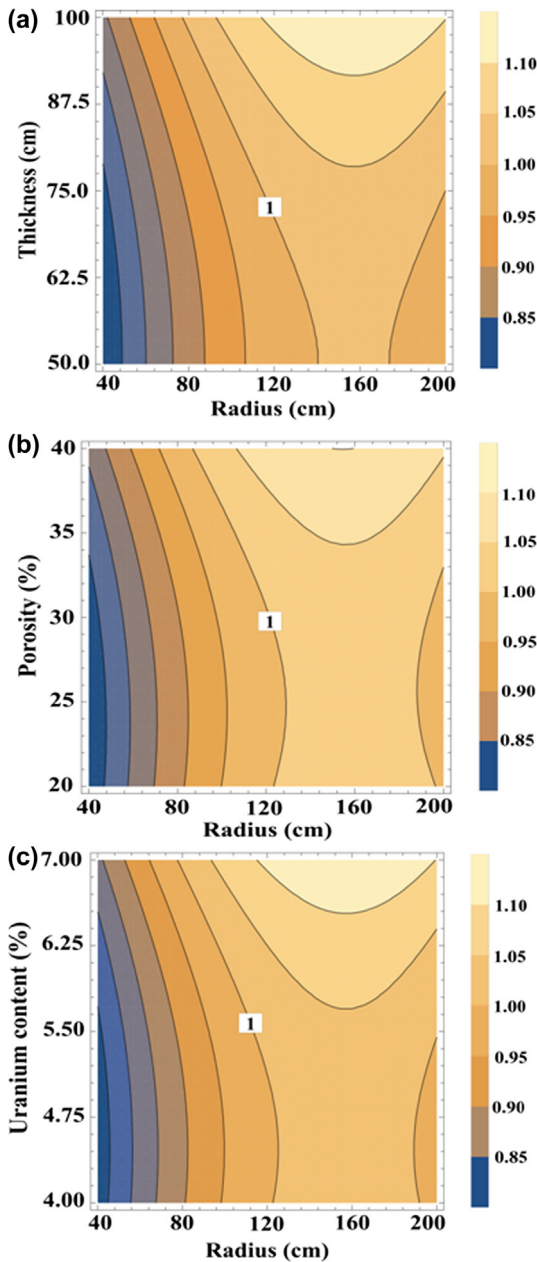


Fig. 9. Contour plots of the combined effect of: (a) Radius and Thickness, (b) Radius and Porosity, (c) Radius and Uranium content, on the criticality in RZ9 reactor with reflectors.

low porosities and low uranium content. It should be noticed that in the latter case, a significant reduction of critical volume is registered, even at low porosities and low uranium content.

The used model to obtain the predicted  $k_{eff}$  as a function of studied

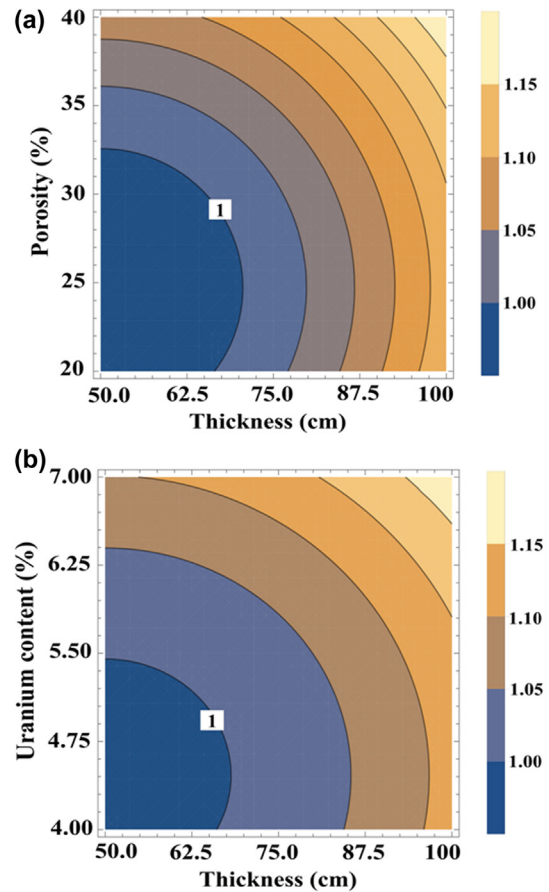


Fig. 10. Contour plots of the combined effect of: (a) Thickness and Porosity, (b) Thickness and Uranium content on the criticality in RZ9 reactor with reflectors.

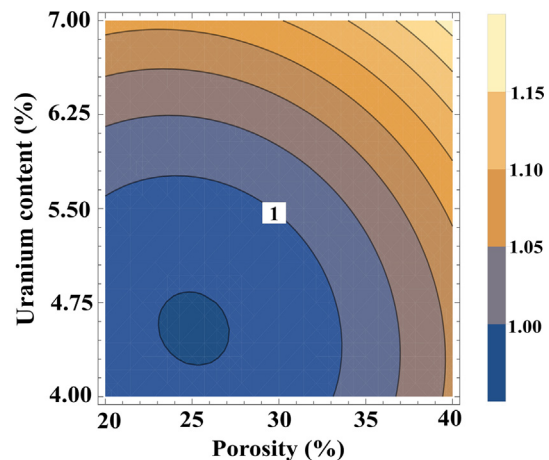


Fig. 11. Contour plots of the combined effect of porosity and uranium content on the criticality in RZ9 reactor with reflectors.



**Table 6**  
Confirmation of the validity of model for RZ9 reactor with reflectors.

Thickness (cm)	Radius (cm)	Porosity (%)	Uranium content (%)	Response ( $k_{eff}$ )		
				Predicted	Calculated by Eq. (11)	Calculated by MCNP6
50	128	32.5	5	1	1.0199	1.0250
50	128	33.3	4.75	1	1.0047	1.0164
70	120	30	5.14	1	1.0929	1.0756
66.25	128	30	4	1	1.0169	1.0158
70	128.9	25	5	1	1.0719	1.0565

parameters, showed a satisfactory concordance with both analytical and numerical calculations, respectively the two-group diffusion model and MCNP6 calculations.

### Acknowledgment

We thank the DOE for allowing the use of MCNP versions through the GTRI cluster available at COMENA.

We are also indebted to the anonymous referees for their pertinent comments and their valuable suggestions.

### References

Bentridi, S.E., Gall, B., Gauthier-Lafaye, F., Seghour, A., Medjadi, D.E., 2011a. Inception and evolution of Oklo natural nuclear reactor. *C. R. Geoscience* 343, 738–748.

Bentridi, S.E., Gall, B., Gauthier-Lafaye, F., Seghour, A., 2011b. Monte-carlo based numerical modeling and simulation of criticality conditions occurrence in natural reactor zone 9 in Oklo deposit (Gabon). *Prog. Nucl. Sci. Technol.* 2, 395–400.

Bentridi, S.E., Gall, B., Gauthier-Lafaye, F., Seghour, A., Pape, A., Medjadi, D.E., 2013. Criticality of Oklo natural reactors: realistic model of reaction zone 9. *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 60, 278–283.

Brewer, R., 2009. Criticality Calculations with MCNP5: A Primer, La-UR-09-00380. Los-Alamos, USA.

Bodu, R., Bouzigues, N., Morin, N., Pelmann, A., 1972. Sur l'existence d'anomalies isotopiques rencontrées dans l'uranium du Gabon. *C.R. Acad. Sci. Paris, Sér. D* 275, 1731.

Gauthier-Lafaye, F., Holliger, P., Blanc, P.L., 1996. Natural fission reactors in the Franceville basin, Gabon: a review of the conditions and results of a "critical event" in a geologic system. *Geochem. Cosmochim. Acta* 60, 4831–4852.

Gauthier-Lafaye, F., 2002. From nuclear fuels to waste: current research: 2 billion year old natural analogs for nuclear waste disposal: the natural nuclear fission reactors in Gabon (Africa). *C.R. Physique* 3, 839–849.

Gauthier-Lafaye, F., Weber, F., 2003. Natural Nuclear fission reactors: time constraints for

occurrence, and their relation to uranium and manganese deposits and to the evolution of the atmosphere. *Precambrian Res.* 120, 81–100.

Gauthier-Lafaye, F., 2006. Time constraint for the occurrence of uranium deposits and natural nuclear fission reactors in the Paleoproterozoic Franceville Basin (Gabon). In: In: Kesler, S.E., Ohmoto, H. (Eds.), *Evolution of Early Earth's Atmosphere, Hydrosphere, and Biosphere-Constraints from Ore Deposits*, vol. 198. Geological Society of America Memoir, pp. 157–167.

Gould, C.R., Sharapov, E.I., Lamoreaux, S.K., 2006. Time variability of  $\alpha$  from realistic models of Oklo reactors. *Phys. Rev. C* 74 024607.

Goupy, J., Creighton, L., 2007. Introduction to Design of Experiments. SAS Institute Inc, USA.

Hidaka, H., Gauthier-Lafaye, F., 2000. Redistribution of fissionogenic and non-fissionogenic REE, Th and U in and around natural fission reactors at Oklo and Bangombé, Gabon. *Geochem. Cosmochim. Acta* 64 (No. 12), 2093–2108.

IAEA-International Atomic Energy Agency, 1975. In: Symposium on the Oklo Phenomenon ; Libreville, Gabon; 23 Jun 1975 ; IAEA-SM-204/6, Vienna (Austria).

Karam, S., 2004. Application de la méthodologie des plans d'expériences et de l'analyse de données à l'optimisation des processus de dépôt. Ph.D. Thesis. Université de Limoges (France).

Lamarsh, J.R., Baratta, A.J., 2001. Introduction to Nuclear Engineering. Prentice-Hall, Inc, New Jersey.

Lewis, E.E., 2008. Fundamentals of Nuclear Reactor Physics. Elsevier Inc, USA.

Loss, R.D., De Laeter, J.R., Rosman, K.J.R., Benjamin, T.M., Curtis, D.B., Gancarz, A.J., Delmore, J.E., Maeck, W.J., 1988. The Oklo natural reactors, cumulative fission yields and nuclear characteristics of reactor zone 9. *Earth Planet. Sci. Lett.* 89, 193–206.

Naudet, R., 1991. Des Réacteurs Nucléaires Fossiles-Etude Physique. Eyrolles, Paris.

Neuilly, M., Bussac, J.J., Frejacques, C., Nief, G., Vendryes, G., Yvon, J., 1972. Sur l'existence dans un passé reculé d'une rétention en chaîne naturelle de fission dans le gisement d'uranium d'Oklo (Gabon). *C.R. Acad. Sci. Paris, Sér. D* 275, 1847–1849.

Petit, J.C., 1992. Natural analogues for the design and performance assessment of radioactive waste forms: a review. *J. Geochem. Explor.* 46, 1–33.

Petrov, Yu. V., Nazarov, A.I., Onegin, M.S., Petrov, V.Yu, Sakhnovsky, E.G., 2006. Natural nuclear reactor at Oklo and variation of fundamental constants: computation of neutronics of a fresh core. *Phys. Rev. C* 74, 1–17.

Shlyakhter, A.I., 1976. Direct test of the constancy of fundamental nuclear constants. *Nature* 264, 340.

## Analytical evaluation of criticality in RZ9 reactor

Khadidja MOHAMMED CHERIF <sup>a \*</sup>, Abdeslam SEGHOURE <sup>b</sup>, Fatima  
Zohra DEHIMI <sup>b</sup>

<sup>a</sup> Laboratoire de physique des rayonnements et leurs interactions avec la matière, 05 Avenue Chahid  
Boukhrouf Batna 05000, Algérie

<sup>b</sup> Centre de Recherche Nucléaire d'Alger CRNA, 2Bvd Frantz Fanon16002 Alger, Algérie

### ARTICLE INFO

#### Article history :

Received September 2014

Accepted January 2015

#### Keywords :

diffusion equation ;

Oklo ;

Natural reactor ;

Monte Carlo.

### ABSTRACT

The diffusion equation is widely used to estimate the reactor properties. In this work, this method is presented to evaluate the effective multiplication factor of neutrons in Oklo natural nuclear reactors. The results obtained by analysis of the geometric configurations as function of the reactor's dimensions, are compared with those obtained using the Monte Carlo simulation method for the same configurations of Oklo natural nuclear reactor.

©2015 LESI. All right reserved.

## 1. Introduction

Natural Nuclear fission reactors are very high grade Uranium ores where chain fission reactions took place spontaneously 2 billion years ago and have been sustained for quite a long time in a natural environment without any human contribution [1,2].

The possibility of natural fission reactors occurring was predicted by P.Kuroda in 1956 following a suggestion by G. Whetherill and M. Inghram [3], but no trace of a natural reactor had been found. The existence of these reactors was discovered in 1972 at Oklo in Gabon (West Africa) and known as "The OKLO phenomenon". To date, about fifteen natural fission reactors have been unearthed in the sedimentary deposits ; fourteen reactors were located at the Oklo-Okelobondo area and one reactor at Bangombé 30Km away [1-3].

The occurrence of these reactors has several important implications ; it could be used to find precise limits on possible changes of fundamental constants, on other hand provided a model on how to retain nuclear wastes [3,4].

The operation of the Oklo reactors depends upon the existence of conditions suitable to sustain fission. Parametric studies of nuclear criticality at Oklo [5] have been carried out by R.Naudet whose can explain the criticality conditions only for the biggest reactor RZ2,

\*Email : cherifkhadidja\_dz@yahoo.fr

but he can not extend this study to explain the occurrence of criticality in the smallest reactor RZ9. Using the Monte-Carlo MCNP code, the occurrence of criticality in such reactor could be explained [6,7].

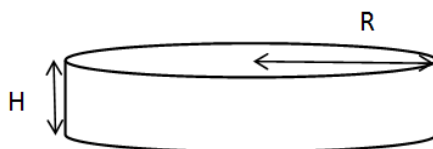
In this work, an analytical method was used to study the neutron multiplication factor as function of porosity and uranium concentration in order to find the minimum size necessary for criticality in RZ9 reactor.

## 2. Theory

### 2.1. Two group neutron diffusion theory :

Several techniques are available to compute the effective multiplication factor. An analytical method based on the two group neutron diffusion theory was used.

We consider firstly a cylindrical geometry for the RZ9 reactor with radius R and thickness H without reflector. This geometry is chosen according to the observation made in the field [2,6,10].



**Fig. 1.** Geometrical model of the reactor.

The two group equations describing the reactor are [8] :

$$\begin{aligned} D_{th}\Delta\Phi_{th} - \sum_a \Phi_{th} + P\sum_F \Phi_F &= 0 \\ D_F\Delta\Phi_F - \sum_F \Phi_F + \frac{K_\infty}{PK_{eff}}\sum_a \Phi_{th} &= 0 \end{aligned} \tag{1}$$

All group fluxes have the same spatial dependence which are determined by the one group reactor equation, so, we can represent the spatial dependence of the flux with Helmholtz equations [8] :

$$\begin{aligned} \Delta\Phi_{th} + B^2\Phi_{th} &= 0 \\ \Delta\Phi_F + B^2\Phi_{th} &= 0 \end{aligned} \tag{2}$$

Using these equations to replace  $\Delta$  terms in Eq. (1) we obtain :

$$K_{eff} = \frac{K_\infty}{(1+B^2L^2)(1+B^2\tau)}$$

The effective multiplication factor is expressed in terms of the infinite multiplication factor and the non leakage probability for both thermal and fast neutrons. The quantities  $B^2L^2$  and  $B^2\tau$  are therefore small, so, when the denominator of the critical Eq. (3) is multiplied out the term  $B^4L^2\tau$  can be ignored, the resulting expression is [8] :

$$K_{eff} = \frac{K_\infty}{1+B^2M^2}$$

Where :

$$M^2 = L^2 + \tau, \text{ the migration area.}$$

$$L^2 = \frac{D}{\sum_a}, \text{ the thermal diffusion area.}$$

$$\tau = \frac{1}{3\sum_{tr}\xi_{avg}} \ln\left(\frac{E_0}{E}\right), \text{ neutron age.}$$

$$B^2 = \left(\frac{\pi}{H}\right)^2 + \left(\frac{2.405}{R}\right)^2, \text{ geometric buckling.}$$

The infinite multiplication factor is given by the four factor formula :  $K_\infty = \eta \epsilon P f$

$$f = \frac{\sum a(fuel)}{\sum a(total)}, \text{ the thermalisation utilization factor}$$

$$\eta = \nu \frac{\sum f(fuel)}{\sum a(fuel)}, \text{ the thermal fission factor}$$

$$\epsilon = 1, \text{ fast fission factor}$$

$$P = \exp - \left( \frac{N_{238} I_{eff}}{\xi_{avg} \sum_{sth}} \right), \text{ the resonance escape probability}$$

To compute the parameters  $K_\infty$  and  $M^2$ , the material composition of the reactor must be given.

### 2.2. Composition of the Oklo RZ9

The ore sample used in this study is defined by two volumes [6] : a solid volume and a fluid volume. The solid volume is divided in two volumes, uraninite and gangue (90% silica and 10% clay) which is defined according to the chemical analyses performed on various samples from the RZ9 core [6]. The element composition of the clay is given in Table 1.

**Table 1.** The element composition of the clay.

Chlorite			Illite	
	Atom/Mesh	Weight	Atom/Mesh	Weight
Si	3.17	89.0326	2.87	80.6068
Al	2.49	67.1852	3.22	86.8820
Mg	0.18	4.3749	1.04	25.2772
Fe	0.14	7.8186	2.88	160.8394
Na	0.03	0.6900	0.02	0.4600
K	0.72	28.1506	0.03	1.1729
O	12.35	197.5877	16.00	255.9840
H	3,05	3.0741	6.00	6.0474

The volume fraction of uraninite is designed by  $V_{UO_2}$ , it represents the volume of the uraninite in a volume of  $1cm^3$  of the hydrated ore. The fluid used in this study is only water, it used as moderator under Oklo ( $P, T$ ) conditions. Its volume fraction is designed by  $\Phi_T$ . So, for each values of  $V_{UO_2}$  and  $\Phi_T$  we can write the total hydrated ore density as [6] :

$$\rho_{ore} = V_{UO_2} * \rho_{UO_2} + \Phi_T * \rho_{fluid} + (1 - \Phi_T - V_{UO_2}) * \rho_{gangue} \tag{3}$$

### 2.3. Compute the macroscopic cross section

To compute the macroscopic cross section  $\Sigma = N\sigma$ , we must firstly compute the number density, it is related to the density  $\rho$  and atomic number  $A$  by :  $N = N_A \frac{\rho}{A}$  where  $N_A = 6,023 \times 10^{23}$  is Avogadro's number. For a mixture of elements the number density is :

$$N_x = N_A f_x / A \tag{4}$$

where we define the mass fraction for an ingredient x as :

$$f_x = \%_x^{vol} \times \rho_x \tag{5}$$

the mass fraction of uraninite, water and gangue are :

$$\begin{aligned} f_{UO_2} &= V_{UO_2} \times \rho_{UO_2} \\ f_{water} &= \Phi_T \times \rho_{water} \\ f_{gangue} &= (1 - \Phi_T - V_{UO_2}) \times \rho_{gangue} \end{aligned} \tag{6}$$

The density of the gangue is defined as [6] :

$$\frac{1}{\rho_{gangue}} = \frac{\%massclay}{\rho_{clay}} + \frac{\%masssilica}{\rho_{silica}} \tag{7}$$

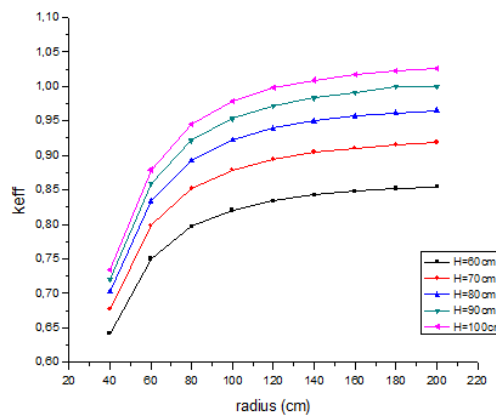
With :

$$\frac{1}{\rho_{clay}} = \frac{\%massillite}{\rho_{illite}} + \frac{\%masschloritr}{\rho_{chlorite}} \tag{8}$$

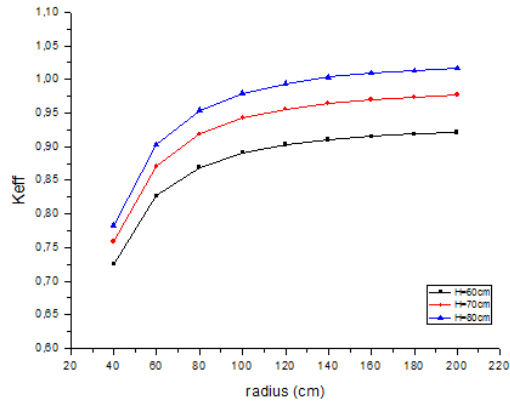
### 3. Results

The aim of this work was to study the criticality of RZ9 using an analytical method. The use of Eq. (4) allowed us to study  $K_{eff}$  as function of radius  $R$ , by varying the thickness  $H$  from 60cm to 100cm by 10cm steps, under different physical conditions of  $\Phi_T$  and  $V_{UO_2}$ . these conditions were chosen for  $\Phi_T = 20\%$ , 30% and 40% and  $V_{UO_2}$  from 4% to 7%. the radius  $R$  had a 20cm variation steps.

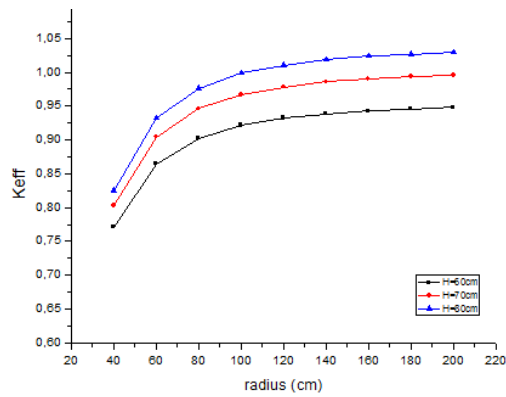
The results obtained are shown in figures, a comparison between these results and those obtained using the MCNP code shows a satisfactory agreement.



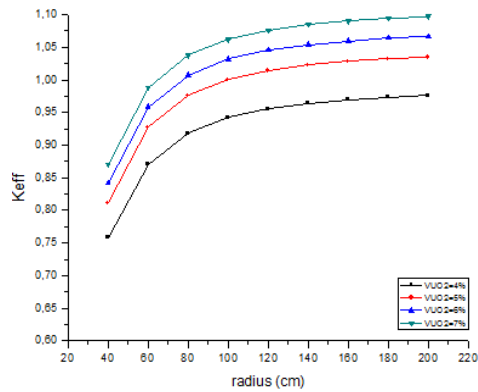
**Fig. 2.** effective multiplication factor versus radius of reactor for  $\Phi_T = 20\%$  and  $V_{UO_2} = 4\%$ .



**Fig. 3.** effective multiplication factor versus radius of reactor for  $\Phi_T = 30\%$  and  $V_{UO_2} = 4\%$ .



**Fig. 4.** effective multiplication factor versus radius of reactor for  $\Phi_T = 40\%$  and  $V_{UO_2} = 4\%$ .



**Fig. 5.** effective multiplication factor versus radius of reactor for different values of  $V_{UO_2}$  at  $\Phi_T = 30\%$

This study shows us once again that the criticality may occur at low concentration and low porosity but with dimensions quite big (Fig. 2). We observe also that the critical dimensions were sensitive to porosity, they decreased from ( $H = 90\text{cm}$  and  $R = 180\text{cm}$  at  $\Phi_T = 20\%$ ) to ( $H = 80\text{cm}$  and  $R = 120\text{cm}$  at  $\Phi_T = 40\%$ ). The increase of porosity led to smaller dimensions due to the thermalisation effect.

The Fig. (5) shows that the subcritical state with  $H = 70\text{cm}$  at  $\Phi_T = 30\%$  can achieve the criticality when  $V_{UO_2}$  exceeds 4%. It was possible to found criticality under this conditions, the critical radius obtained is  $R = 100\text{cm}$  ( $V_{UO_2} = 5\%$ ),  $R = 80\text{cm}$  ( $V_{UO_2} = 6\%$ ) and  $R = 65\text{cm}$  ( $V_{UO_2} = 7\%$ ).

#### 4. Conclusion

Using the chemical composition of the initial ore and based on the two group neutron diffusion equation, the criticality on the RZ9 reactor is studied. This analytical study allows us to find relatively the same results obtained using the MCNP code.

The aim of the continued research will be to use this equation to study the reactor with reflectors, and verify the efficacy of this method to predict the conditions that led to the operation of the RZ9 reactor.

#### REFERENCES

- [1] F. Gauthier-Lafaye, *From nuclear fuels to waste : current research : 2 billion year old natural analogs for nuclear waste disposal : the natural nuclear fission reactors in Gabon(Africa)*, C.R. Physique, 3,839-849, 2002.
- [2] F. Gauthier-Lafaye, P. Holliger, P. L. Blanc, *Natural fission reactors in the Franceville basin, Gabon : Areview of the conditions and results of "critical event" in a geological system*". Geo. Cosmo. Acta, vol. 60, No. 23, pp. 4831-4852, 1996.
- [3] Y. V. Petrov et al., *Natural nuclear reactor at Oklo and variation of fundamental constants : Computation of neutronics of a fresh core*, Phys. Rev., C74, 064610, pp 1-17, 2006.
- [4] W. G. Culberth, *Nuclear Criticality Analysis of the Oklo Natural Reactors*, Department of Civil and Environmental Engineering, UNLV/WPP 96.02, 1996.
- [5] R. Naudet, *OKLO : Des réacteurs nucléaires fossils*, Etude physique, Eyrolles, Paris, 1991.
- [6] S. E. Bentriddi, B. Gall, F. Gauthier-Lafaye, A. Seghour, *Monte Carlo Based Numerical Modeling and Simulation of Criticality conditions Occurrence in Natural reactor Zone 9 in Oklo deposit(Gabon)*, Progress in Nuclear Science and Technology, Vol.2, pp395-400, 2011.
- [7] J. R. Lamarsh, A. J. Baratta, *Introduction to Nuclear Engineering*, Prentice-Hall, Inc, 2001.
- [8] W. M. Stacey, *Nuclear Reactor Physics*, WILLEY-VCH, 2007.
- [9] R. D. Loss, J. R. De Laeter, K. J. R. Rosman, T. M. Benjamin, D. B. Curtis, A. J. Gancarz, J. E. Delmore, W. J. Maeck, *The Oklo natural reactors : cumulative fission yields and nuclear characteristics of Reactor Zone 9*, Earth and Planetary Science Letters, 89 pp193-206, 1988.