

Monographies DEN

Une monographie de la Direction de l'énergie nucléaire
Commissariat à l'énergie atomique,
91191 Gif-sur-Yvette Cedex
Tél. : 01 64 50 10 00

Comité scientifique

Michel Beauvy, Georges Berthoud, Mireille Defranceschi,
Gérard Ducros, Yannick Guérin, Yves Limoge, Charles Madic,
Gérard Santarini, Jean-Marie Seiler, Pierre Sollogoub,
Étienne Vernaz, Directeurs de Recherche.

Responsables de thème : Jean-Luc Guillet et Yannick Guérin.

Ont participé à la rédaction de cette monographie :

Alain Ballagny, Bernard Bonin, Jean-Christophe Brachet,
Marc Delpéch, Sylvie Dubois, Gérard Ducros, Cécile Ferry,
Michel Freyss, Didier Gilbon, Jean-Paul Grouiller, Yannick Guérin,
Daniel Iracane, Sylvie Lansiat, Patrick Lemoine, Richard Lenain,
Philippe Marsault, Bruno Michel, Jean Noiro, Daniel Parrat, Michel
Pelletier, Christophe Perrais, Mayeul Phelip, Sylvie Pillon,
Christophe Poinssot, Joëlle Vallory, Carole Valot.

Directeur de la Publication : Philippe Pradel.

Comité éditorial : Bernard Bonin (Rédacteur en chef),
Bernard Bouquin, Martine Dozol, Mickaël Lecomte, Alain Vallée.

Administrateur : Fanny Bazile.

Éditeur : Jean-François Parisot.

Maquette : Pierre Finot.

Correspondance : la correspondance peut être adressée
à l'Éditeur ou à CEA / DEN Direction scientifique, CEA Saclay
91191 Gif-sur-Yvette Cedex.
Tél. : 01 69 08 16 75

© CEA Saclay et Groupe Moniteur (Éditions du Moniteur),
Paris, 2008

ISBN 978-2-281-11325-9
ISSN en cours

La reproduction des informations contenues dans ce document est
libre de tous droits, sous réserve de l'accord de la rédaction
et de la mention d'origine.

Commissariat à l'énergie atomique

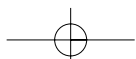
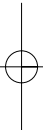
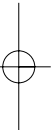
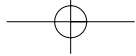
e-den

Une monographie de la Direction
de l'énergie nucléaire

Les combustibles nucléaires

EDITIONS
LE MONITEUR





Préface

Après un départ fulgurant au cours des années 50, où elle représentait pour beaucoup l'espoir d'une source d'énergie inépuisable et à coût compétitif, l'énergie nucléaire a connu, dans les années 80-90, un rejet de la part d'une majorité de l'opinion publique dans plusieurs pays, en Amérique du Nord et en Europe occidentale, suivi d'un brutal coup d'arrêt de son développement.

En effet, si les chocs pétroliers des années 1973 et 1979 ont marqué le début de programmes d'équipements massifs dans quelques pays lourdement pénalisés par les importations de pétrole – comme la France et le Japon – ils ont paradoxalement été suivis d'une interruption des investissements nucléaires aux États-Unis, d'abord, puis en Europe occidentale. Pourtant, les tensions encore récentes sur le marché du pétrole et le début des inquiétudes sur le caractère épuisable des ressources naturelles auraient dû, au contraire, les renforcer.

Les raisons de cette pause sont certainement multiples et s'expliquent, en partie, par les accidents de Three Mile Island en 1979, et de Tchernobyl en 1986, qui eurent un fort impact sur les opinions publiques. Par ailleurs, les mouvements écologistes et les partis Verts firent de la contestation de l'énergie nucléaire un des thèmes principaux de leurs programmes, fortement relayée par la presse.

En France, alors que l'implantation des centrales nucléaires n'avait, à une exception près, pas suscité de véritable débat dans la population, une attitude de refus s'est fait jour à la fin des années 80 sur la question des déchets nucléaires. Face aux difficultés croissantes rencontrées par l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (ANDRA) à la recherche d'un site pour l'implantation d'un laboratoire souterrain, le gouvernement de l'époque décidait de suspendre les travaux, établissait un moratoire d'un an et saisissait du problème l'Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et technologiques (OPECST).

En reprenant l'essentiel des recommandations de l'Office, notamment la définition d'un programme de recherche diversifié, mais aussi les prémices d'un dialogue démocratique avec les populations concernées, la loi du 30 décembre 1991 sur la gestion des déchets nucléaires a largement contribué à apaiser le débat. Or, s'il est maintenant bien admis que la gestion à long terme des déchets nucléaires existants est une nécessité, la poursuite du programme électronucléaire en France n'est pas encore assurée : c'est ainsi que la loi sur l'énergie du 13 juillet 2005 se contente de « maintenir l'option nucléaire ouverte à l'horizon 2020 ».

Pourtant, ce siècle devrait être marqué par une prise de conscience collective que la réponse aux besoins en énergie de notre génération ne peut pas se concevoir sans tenir compte du respect de l'environnement et sans préserver le droit des générations futures à satisfaire ces mêmes besoins. C'est le concept du développement durable auquel notre société sera inévitablement confrontée.

L'origine anthropique du réchauffement de la planète sous l'effet de l'accroissement considérable des rejets de gaz à effet de serre, n'est plus aujourd'hui contestée. Seules les conséquences de ce réchauffement font encore l'objet de débats. Les nations industrielles,

qui sont, en grande partie, à l'origine de la situation actuelle, ont une responsabilité particulière qui doit les inciter à diminuer de manière volontariste les émissions de ces gaz. L'énergie nucléaire, qui échappe par nature à ce type d'émissions, tout en étant capable de produire une énergie relativement abondante, fiable et économiquement compétitive, devrait tout naturellement s'imposer.

La situation est contrastée au niveau mondial. D'un côté, certains pays européens, comme l'Allemagne et la Belgique, ont fait le choix de cesser progressivement l'utilisation de l'énergie nucléaire, même si aucune réversibilité à cet égard n'a été engagée. De l'autre, des pays comme la Chine, la Corée-du-Sud et, plus près de nous, la Finlande, investissent fortement dans le développement de cette filière. Par ailleurs, selon une récente déclaration du président Bush, les États-Unis seraient déterminés à lancer, avant la fin de la décennie, des projets de construction de nouvelles centrales nucléaires, un processus interrompu depuis plus de vingt-cinq ans.

En France, suite au débat national sur les énergies qui s'est tenu au premier semestre 2003, la loi d'orientation sur l'énergie adoptée en juin 2005 a consacré la décision de construire un réacteur démonstrateur EPR pour préparer la relève des centrales actuellement en service.

Plusieurs signes donnent donc à penser que la « renaissance » de l'énergie nucléaire pourrait être proche, notamment si le prix du baril de pétrole brut se négocie durablement à 70 dollars US ou plus. Néanmoins, l'avenir du nucléaire dans notre pays, comme dans d'autres, dépendra beaucoup de sa capacité à traiter correctement les deux préoccupations suivantes :

- La première touche à son acceptabilité sociale ; il importe que l'utilisation du nucléaire se fasse dans des conditions de sûreté et de sécurité optimales, en produisant un minimum de déchets ultimes et que ceux-ci soient parfaitement maîtrisés au plan de leur impact éventuel sur la santé et sur l'environnement ;
- la seconde concerne la disponibilité de ses ressources ; il est important de garantir l'approvisionnement en combustible sur le long terme, en préparant le recours à des filières plus économes de la matière fissile naturelle et surtout plus indépendantes des fluctuations de ses marchés.

Ces sujets sont au cœur des missions de la Direction de l'énergie nucléaire du CEA. Celle-ci est, en effet, un acteur majeur de la recherche visant à soutenir l'industrie nucléaire dans l'amélioration de la sûreté et de la compétitivité des réacteurs, à fournir aux pouvoirs publics les éléments de choix sur la gestion à long terme des déchets nucléaires et, enfin, à développer les systèmes nucléaires du futur, essentiellement les réacteurs à neutrons rapides, porteurs d'améliorations très prometteuses sur le plan de la gestion des déchets et de l'utilisation des matières premières.

Étant un fervent partisan d'une diffusion de la connaissance scientifique et technique la plus large possible, il me paraît de première importance que ces travaux de recherche, qui font appel à une grande diversité de disciplines scientifiques et qui se situent souvent au meilleur niveau mondial, soient présentés et expliqués à tous ceux qui souhaitent forger leur propre opinion sur l'énergie nucléaire. C'est pourquoi je salue, avec une sincère satisfaction, la publication de ces monographies DEN dont la consultation attentive sera très certainement une source incomparable d'informations pour leurs lecteurs que j'espère nombreux.

Je remercie tous ceux, chercheurs et ingénieurs, qui, en contribuant à la réalisation de ce dossier, ont eu à cœur de faire partager leur expérience et leur savoir.

Bernard BIGOT
Haut-Commissaire à l'énergie atomique



Le combustible : le « consommable » des réacteurs

Dans le cœur des réacteurs nucléaires, le combustible est le siège de la **fission*** des atomes lourds d'uranium ou de plutonium. Il constitue la source de la chaleur qui, *in fine*, va permettre la production d'électricité, voire celle d'énergie pour d'autres applications.

Le combustible est la partie consommable des réacteurs : il y séjourne quelques années avant d'avoir atteint ses limites de fonctionnement, alors que les réacteurs ont en eux-mêmes une durée de vie de plusieurs décennies. Au cours de la vie d'un réacteur, c'est le seul composant dont il est possible d'améliorer les performances, à l'occasion de nouvelles recharges. Il y a, en outre, un fort intérêt économique à en augmenter le temps de séjour puisqu'il fournira plus d'énergie pour un coût de **cycle*** voisin.

On appelle « élément combustible » l'ensemble constitué de la matière **fissile***, généralement sous forme d'un empilement de pastilles cylindriques, et de sa gaine qui forme la première barrière de confinement des matières radioactives. Toutes les études de conception et de dimensionnement des éléments combustibles ont pour objectif de garantir la tenue de cette première barrière dans les différentes situations de fonctionnement. En cas de situation accidentelle, les combustibles sont les principales sources potentielles de pollution radioactive de l'environnement ; cet aspect est donc systématiquement pris en compte dans les développements.

Comprendre et modéliser le comportement du combustible en réacteur fait appel à de très nombreux domaines de la physique : la **neutronique*** pour définir les réactions nucléaires de fission et de transmutation au sein du combustible, la physique des matériaux pour évaluer les dommages causés à la structure cristalline par les neutrons et surtout par la dissipation de l'énergie de fission, la thermique pour évaluer avec précision l'évacuation de la chaleur vers le fluide **caloporteur*** et calculer l'évolution des températures en chaque point ; la mécanique permet de calculer les déformations et contraintes dans les pastilles combustibles et dans la gaine ainsi que le risque de rupture de cette dernière ; le recours à la thermodynamique permet d'évaluer les différents composés susceptibles d'être formés par les éléments créés par la réaction nucléaire de fission (appelés « produits de fission » (PF) : plus de 10 % des atomes présents en fin d'irradiation n'existaient pas en début de vie) ; à la chimie du solide d'appréhender les cinétiques avec lesquelles le système, généralement hors d'équilibre, va évoluer en fonctionnement

nominal et lors des différents transitoires susceptibles d'intervenir.

La finalité des études sur les combustibles est de répondre à deux grandes séries de questions :

- Quelles sont les connaissances sur les combustibles actuels des réacteurs à eau sous pression (REP) ? Quelles sont les limites de ces combustibles et les développements pour améliorer leurs performances ?
- quels combustibles pour les réacteurs du futur ?

Différents matériaux ont été utilisés ou envisagés comme combustibles depuis le début du développement des réacteurs nucléaires. Les isotopes fissiles d'**actinides*** ont été intégrés soit dans des alliages métalliques stables, soit dans des céramiques réfractaires (oxydes, nitrures, carbures ou siliciures). D'autres matériaux plus complexes sous forme de composites CERCER –mélange céramique-céramique) ou CERMET (mélange céramique-métal) ont aussi été étudiés, et ces concepts sont aujourd'hui revisités pour certains réacteurs du futur. Ce sont essentiellement les oxydes d'actinides qui ont été employés à l'échelle industrielle dans le monde comme combustibles dans les réacteurs de puissance. Les alliages métalliques ont le désavantage d'une température de fusion basse, et de plus, ils forment des **eutectiques*** qui diminuent encore cette température, d'où une utilisation limitée à moins de 1 000 °C. Les oxydes sont par contre très stables et très réfractaires, avec une température de fusion au dessus de 2 500 °C. Malgré tout, même si ces oxydes répondent convenablement à leur fonction de combustible dans les différents réacteurs depuis plus de 40 ans, ils ne représentent pas les matériaux idéaux, en particulier à cause de leur conductivité thermique relativement faible. Les autres candidats comme les nitrures et les carbures, potentiellement meilleurs que les oxydes du point de vue de leur conductivité thermique, ont cependant beaucoup de mal à s'imposer car la connaissance de leur comportement en réacteur est généralement trop limitée pour garantir une amélioration significative par rapport aux combustibles oxydes.

Dans les REP, le cœur est constitué d'**assemblages*** de **crayons*** combustibles gainés d'un alliage de zirconium et contenant des pastilles d'oxyde d'uranium (avec uranium enrichi # 4 % U 235) ou de MOX (oxyde mixte uranium – plutonium, (U,Pu)O₂ avec une teneur en Pu de 5 à 10 %). Le choix

de l'oxyde comme matériau combustible s'est imposé dans les réacteurs à eau pour différentes raisons, et notamment pour son assez bonne compatibilité chimique avec le caloporteur, en cas de rupture de la première barrière de confinement.

Le **taux de combustion*** ou énergie extraite des assemblages combustibles au moment de leur déchargement est passé en vingt ans de 33 GWj/t à 52 GWj/t. Cette énergie demeure faible en regard du potentiel énergétique de la matière fissile contenue dans le combustible. Les limites sont principalement d'ordre technologique et la R&D en cours permet progressivement de les repousser : ainsi le développement et la qualification d'un nouvel alliage de zirconium (le M5[®], un alliage zirconium – niobium), en tant que matériau de gainage plus résistant à la corrosion que le Zircaloy-4, va permettre de porter le taux de combustion maximal de 52 à 60 GWj/t. De même, la mise au point et la qualification d'un combustible UO₂ dopé à l'oxyde de chrome qui lui confère de meilleures propriétés visco-plastiques tout en augmentant fortement la taille des grains du cristal devrait permettre, à terme, d'améliorer la souplesse d'exploitation des réacteurs et d'accroître encore les taux de combustion.

La R&D sur les combustibles, menée au CEA en collaboration étroite avec les partenaires industriels EDF et AREVA, s'attache à vérifier que toute évolution du combustible constitue un progrès en fonctionnement nominal, mais également dégage des marges vis-à-vis du fonctionnement en situation accidentelle. Les progrès en question passent par une compréhension approfondie des mécanismes physiques et chimiques qui gouvernent le comportement du combustible en réacteur. Cette compréhension s'appuie sur une modélisation, dûment validée par des expériences.

La R&D sur les combustibles des réacteurs du futur correspond à une étape plus lointaine, la nature du combustible étant étroitement associée au type de réacteur et au cycle du dit combustible. Dans le cadre du forum international Génération IV, qui a lancé l'étude de nouveaux systèmes nucléaires, sont recherchés en priorité des combustibles capables de recycler une partie de leurs déchets (voire ceux des générations antérieures), en particulier les **actinides mineurs*** (neptunium [Np], américium [Am], curium [Cm]) créés par transmutation de l'uranium et du plutonium pendant le séjour en réacteur. À cet effet, les réacteurs à neutrons rapides qui favorisent la fission de ces actinides mineurs sont privilégiés.

Dans ces réacteurs à neutrons rapides (RNR), les conditions de fonctionnement imposées au combustible sont plus sévères que dans les REP : la densité de matière **fissile*** doit

être élevée, d'où une forte puissance spécifique dans les pastilles combustibles, des températures de fonctionnement supérieures à celles des REP, et un endommagement important engendré par les neutrons rapides dans les structures métalliques, en particulier les gaines des éléments combustibles.

La situation est aujourd'hui très ouverte : les céramiques oxyde restent un combustible envisageable, l'oxyde étant un matériau robuste qui a fait ses preuves, notamment dans les RNR sodium. Mais le cahier des charges imposé par les RNR, en particulier avec caloporteur gaz, pousse à rechercher un matériau plus dense et meilleur conducteur tels que les céramiques carbures ou nitrures ou des alliages métalliques. Ces matériaux présentent des avantages par rapport à l'oxyde mais également des inconvénients qu'il importe de peser. Des matériaux composites céramique – céramique (CERCER) ou céramique – métal (CERMET) apparaissent également comme des candidats potentiels mais nécessitent des développements importants. De même pour les matériaux de gainage et de structure soumis à un puissant bombardement de neutrons, la recherche de fortes températures conduit aux limites de fonctionnement des alliages connus et nécessite des innovations.

Pour ces combustibles du futur, ces innovations touchent non seulement à la nature des matériaux, mais aussi aux concepts et amènent à examiner les avantages qui pourraient résulter d'une rupture avec les concepts classiques basés sur le principe d'une pastille combustible dans une gaine cylindrique. En particulier, l'idée du combustible à particules utilisé dans les réacteurs HTR a été revisitée ; et les études de dimensionnement pour les réacteurs rapides à gaz mettent en avant certains concepts très innovants tels que les plaques macrostructurées dans lesquels le matériau fissile est inséré dans une céramique en forme de nid d'abeille.

Nombreux sont les défis qui touchent aux combustibles nucléaires. Est résumé dans cette monographie l'état des connaissances sur le comportement en réacteur, les limites d'utilisation et les pistes de R&D en vue d'améliorer les performances des combustibles actuels et développer de nouveaux combustibles pour les réacteurs du futur.

Sans prétendre à l'exhaustivité, la présente monographie illustre également les recherches en cours par la présentation de quelques résultats marquants, obtenus récemment.

Yannick GUÉRIN,
Département d'études des combustibles

À quoi ressemble le combustible des réacteurs à eau ?

Qu'attend-on d'un combustible nucléaire ?

Les objectifs de conception d'un combustible nucléaire peuvent se traduire par les critères suivants :

- Fournir la puissance attendue du réacteur tout au long de la durée des **cycles d'irradiation*** prévus ; le combustible doit donc permettre l'évacuation de la chaleur, tout en assurant la réactivité du cœur du réacteur ;
- confiner les produits de la fission à l'intérieur de l'élément combustible dans les conditions de fonctionnement normales, incidentelles et accidentelles (dans les limites du dimensionnement) ;
- utiliser au mieux la matière fissile pour obtenir le coût de cycle le plus économique.

Cela se traduit par des exigences techniques et technologiques :

- Une puissance dégagée par unité de volume (typiquement de l'ordre de 400 W/cm³ de combustible pour les réacteurs à eau actuels) ;
- une grande fiabilité, associée à une durée de vie élevée : l'assemblage combustible, sa structure et les crayons qui le constituent, doivent résister sans défaillance pendant toute la durée du séjour en réacteur, actuellement quatre à cinq ans, avec un objectif de six ans vers 2010. Le choix des matériaux constitutifs de la structure de l'**assemblage*** et des **gainés*** doit donc tenir compte de leur résistance à l'irradiation et à la corrosion ;
- l'étanchéité du combustible. En situation incidentelle ou accidentelle, la sûreté exige que les matières nucléaires restent confinées ; la gaine du crayon combustible constitue la première barrière de confinement (les deux autres sont le circuit primaire et l'enceinte de confinement) ;
- même si dans des situations accidentelles extrêmes des ruptures de gaine sont inévitables, et si l'assemblage subit des déformations, on doit pouvoir continuer à le refroidir ;
- malgré ces exigences de performance, l'assemblage combustible doit rester simple : simple à fabriquer, à maintenir, à transporter, à réparer, puis, après usage, à entre-

poser. En outre, on exige, notamment en France, qu'il soit « traitable », c'est-à-dire qu'il doit être possible de récupérer les éléments uranium et plutonium qui possèdent un potentiel énergétique.

La céramique combustible

Dans les réacteurs à eau ordinaire, la matière fissile est sous forme d'oxyde polycristallin UO₂ (ou UO₂-PuO₂ dans le cas du combustible MOX). Stables chimiquement, compatibles avec l'eau, ces oxydes résistent bien à la température et à l'irradiation ; l'oxygène de l'oxyde absorbe peu les neutrons, et les cristallites d'oxyde retiennent bien les produits de fission, tout en gardant leur structure cristalline cubique.

Les oxydes d'uranium (UOX) ou les oxydes mixtes d'uranium et de plutonium (MOX) utilisés comme combustibles sont des matériaux polycristallins monophasés relativement denses (environ 95 % de la densité théorique) constitués de petits grains de dioxyde de quelques micromètres. Les dioxydes d'actinide ont une structure de type fluorine et cristallisent sous forme cubique à faces centrées pour le réseau de l'actinide. Ces dioxydes UO_{2+x} ou (U_{1-y}Pu_y)O_{2+x} acceptent un écart à la stoechiométrie important qui correspond à la présence de défauts ponctuels lacunaires ou interstitiels : $0 \leq x \leq 0,25$ pour l'UOX et $-0,25 \leq x \leq 0,25$ pour le MOX à la température ambiante. Cet écart à la stoechiométrie qui conditionne fortement les propriétés des combustibles doit donc être spécifié et respecté à la fabrication. Le dioxyde stoechiométrique d'uranium ($x = 0$) accepte la substitution de l'uranium par du plutonium sur les sites cristallins en toutes proportions ($0 \leq y \leq 1$) et l'oxyde mixte existe donc pour toutes teneurs en plutonium. Toutefois, lorsque l'oxyde n'est plus stoechiométrique, les possibilités de substitution sont beaucoup plus limitées, et pour des teneurs en plutonium dépassant 40%, l'oxyde devient généralement biphasé. Enfin, le dioxyde cubique UO_{2+x} ou (U_{1-y}Pu_y)O_{2+x} est une phase du système U-Pu-O parmi beaucoup d'autres. Toute variation importante de la teneur en oxygène ou plus exactement du rapport O/U+Pu entraîne des changements de phases dont les plus usuelles sont (U_{1-y}Pu_y)₃O₈ et (U_{1-y}Pu_y)₄O₉. Ces nouvelles phases peuvent être observées dans le cycle du combustible, en particulier lorsque le potentiel d'oxygène évolue.

Crayons combustibles

L'oxyde est conditionné sous forme de pastilles frittées (hauteur et diamètre de l'ordre du centimètre avec la hauteur plus grande que le diamètre).

Les pastilles sont empilées dans une gaine métallique destinée à confiner les produits de fission, à assurer le maintien mécanique des pastilles, et à évacuer vers le fluide caloporteur la chaleur produite par les réactions nucléaires. L'ensemble, appelé « crayon combustible », a une longueur d'environ 4 m pour un diamètre voisin de 1 cm.

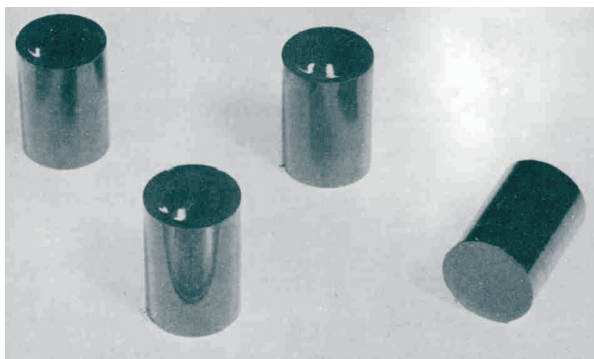


Fig. 1. Pastilles combustibles.

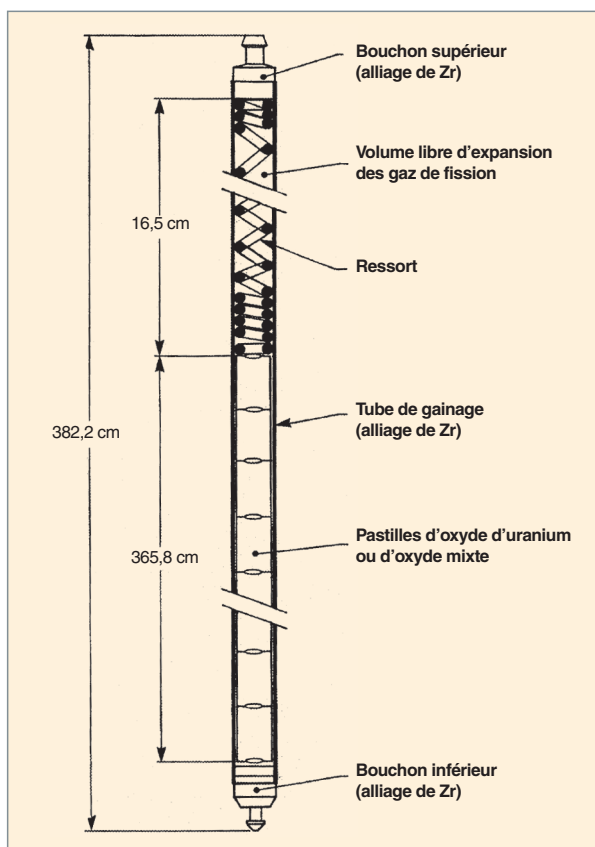


Fig. 2. Schéma d'un crayon combustible (avec les dimensions d'un crayon REP 900 MW).



Fig. 3. Pastilles de combustible MOX, prêtes à être « engainées ».

Outre l'empilement des pastilles et le tube de gainage, ce crayon est constitué de deux bouchons d'extrémités soudés, d'une chambre d'expansion (ou plenum) pour les gaz de fission relâchés et d'un ressort, dans cette chambre d'expansion, qui maintient en place la colonne combustible. Le crayon est rempli d'hélium sous une pression de l'ordre de 25 bars, de façon à compenser, en partie, la pression externe dans le circuit primaire (155 bars en REP).

Le matériau de la gaine est un alliage de zirconium, choisi pour sa transparence aux neutrons, ses propriétés mécaniques et sa résistance à la corrosion. L'alliage le plus couramment utilisé jusqu'à ce jour en REP a été le Zircaloy-4, mais il est actuellement remplacé par de nouveaux alliages à base zirconium – niobium plus résistants à la corrosion (voir chapitre « Les matériaux de gaine et d'assemblage »).

Assemblages combustibles REP

Ces crayons sont regroupés pour former un « **assemblage*** combustible » dans lequel ils sont arrangés en réseau à maille carrée dans une « structure » assurant notamment leur maintien mécanique.

Cet arrangement géométrique permet la circulation de l'eau entre les crayons et donc l'évacuation hors du cœur de la chaleur engendrée dans le cœur du réacteur. Dans un réacteur à eau sous pression, la structure est ouverte, l'eau peut circuler transversalement aux assemblages.

Les assemblages pour **REP*** sont constitués d'une structure comprenant un pied, une tête (appelés embouts inférieur et supérieur) et des tubes guides sur lesquels sont fixées les grilles de maintien des crayons combustibles (et de mélange du caloporteur).

Les crayons absorbants des grappes de contrôle coulisent dans les tubes guides. Un des tubes guides est réservé à l'instrumentation du cœur.

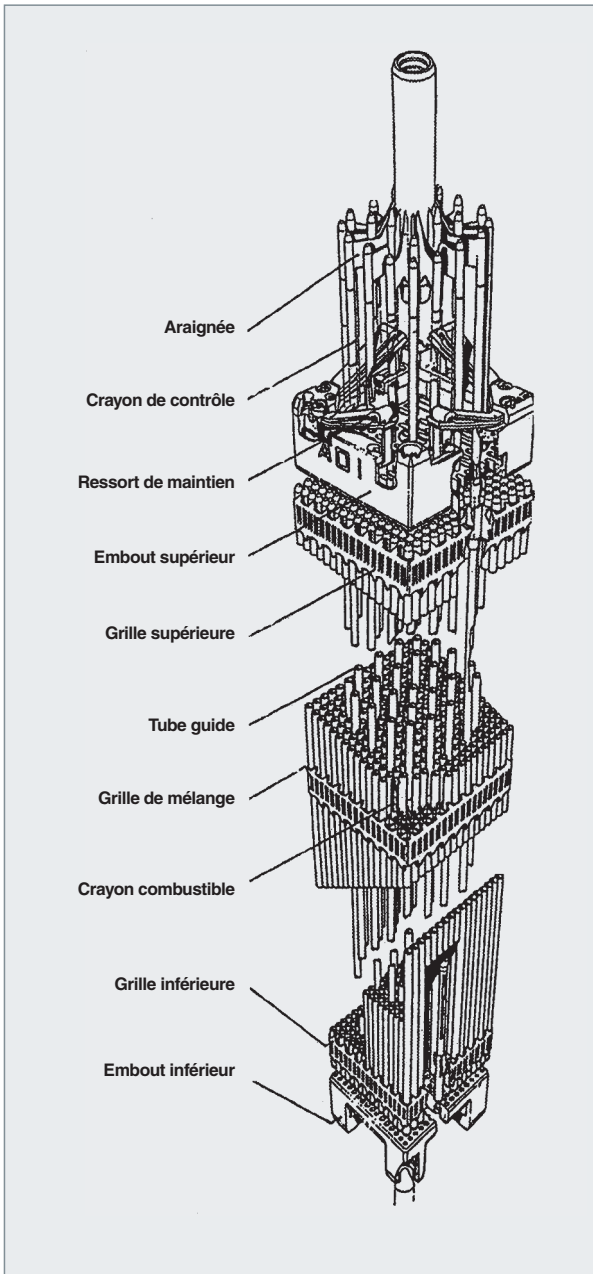


Fig. 4. Schéma d'un assemblage combustible REP 17 x 17 et d'une grappe de contrôle.

Les grilles, soudées sur les tubes guides, assurent, à l'aide de ressorts et de bossettes (fig. 6), le maintien et l'espacement des crayons combustibles. Elles comportent, en outre, des ailettes qui permettent d'améliorer le mélange de veines fluides, et donc d'améliorer les performances thermohydrauliques de l'assemblage.

L'embout inférieur comporte un dispositif antidébris, afin d'arrêter les corps migrants qui ont constitué, à une époque, la principale cause de rupture de gaine. L'embout supérieur assure la fonction de manutention de l'assemblage.

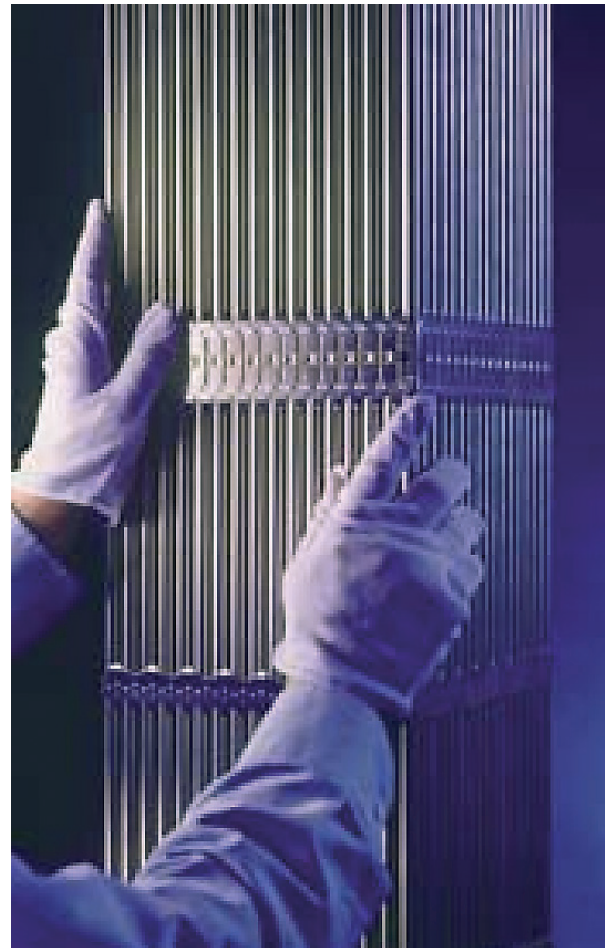


Fig. 5. Photo d'une portion d'assemblage REP, lors de l'étape de contrôle.

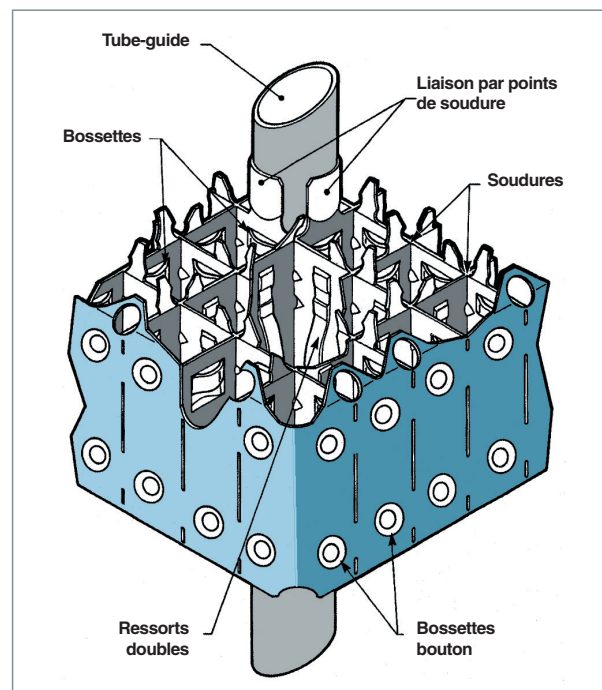


Fig. 6. Schéma d'une grille d'assemblage AFA2G (AREVA).

Assemblages combustibles REB

Dans un réacteur à eau bouillante (**REB***), contrairement aux REP, la structure de l'assemblage est fermée, chaque faisceau de crayons est enfermé dans un boîtier interdisant les échanges transversaux.

Les assemblages de combustible pour REB comportent un boîtier assurant les fonctions de canal hydraulique, de maintien mécanique du cœur, d'unité de manutention du combustible et de guidage des croix de commande (qui s'insèrent entre quatre boîtiers).

Les autres pièces de structure assurent des fonctions comparables à celles des assemblages REP.

Yannick GUÉRIN,
Département d'études des combustibles
et Bernard BONIN,
Direction scientifique

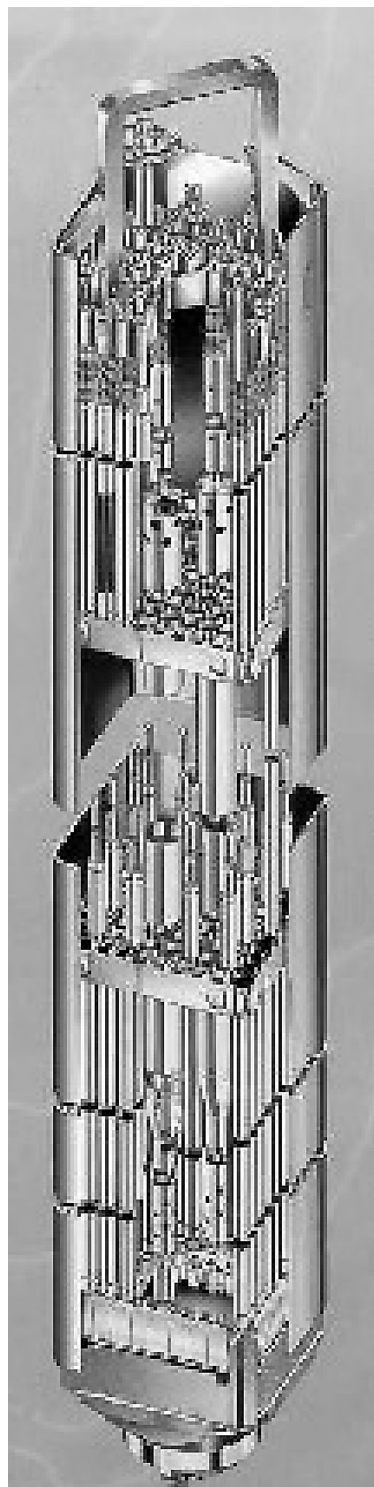


Fig. 7. Schéma d'un assemblage combustible REB.

Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau

La quasi-totalité des combustibles pour réacteurs à eau (REP et REB) est à base d'uranium enrichi (de 3 à 5 % d'U 235) ; dans certains pays et notamment en France, on fabrique aussi des combustibles à oxyde mixte UO_2 - PuO_2 (MOX) permettant de recycler le plutonium.

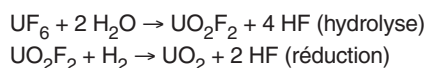
La fabrication des éléments combustibles comporte différentes étapes :

- Élaboration des matériaux (alliages de zirconium notamment) et des composants : tubes de gaines et pièces de structure ;
- préparation des poudres (UO_2 enrichi) ou (UO_2 et PuO_2) ;
- pastillage : mise en forme de pastilles cylindriques et **frittage***, c'est-à-dire cuisson de la céramique ;
- crayonnage : introduction des pastilles et fermeture du crayon ;
- constitution de l'assemblage et entreposage.

Fabrication des pastilles d' UO_2

Le combustible oxyde se présente sous forme de pastilles cylindriques de diamètre et de hauteur de l'ordre du centimètre. Ces pastilles sont élaborées par métallurgie des poudres à partir d'une poudre d'oxyde d'uranium enrichi.

L'enrichissement de l'uranium est réalisé à partir de la molécule gazeuse UF_6 . Le fluorure d'uranium est ensuite transformé en oxyde d'uranium par un procédé de **conversion*** voie sèche (ne mettant en œuvre que des réactions gaz-gaz ou solide-gaz) :



L'ensemble du procédé utilise une installation intégrée comprenant, en tête, un réacteur d'hydrolyse, puis un four rotatif où se produit la défluoruration par pyrohydrolyse réductrice, avec formation de la poudre de dioxyde d'uranium.

La poudre ainsi obtenue a une surface spécifique d'environ $2 \text{ m}^2/\text{g}$, suffisamment basse pour lui conférer une excellente stabilité (pas de risque de **pyrophoricité*** et peu d'évolution dans le temps du rapport O/U), et assez élevée pour lui conférer une bonne frittabilité (une densité de 98 % peut être obtenue lors du frittage de cette poudre sans ajouts).

On vise, pour les pastilles, une densité de 95 % de la densité théorique ; il faut, en effet, une valeur élevée pour garantir une bonne stabilité de la pastille (faible redensification en réacteur), mais on veut également garder quelques pourcents de porosité pour aider la pastille à accommoder son propre gonflement sous irradiation. La densité visée est obtenue en ajoutant à la poudre UO_2 un produit porogène et une certaine proportion d' U_3O_8 . Cette poudre U_3O_8 très fine provient de la calcination des rebuts de fabrication (oxydation de l' UO_2 sous air à $350 \text{ }^\circ\text{C}$), sa présence joue sur la densité finale des pastilles et permet, en outre, d'augmenter la résistance mécanique des ébauches comprimées (procédé UROX).

La poudre UO_2 voie sèche présente une coulabilité insuffisante pour remplir les matrices de presse. Il faut donc passer par une étape de granulation qui consiste à compacter la poudre sous faible pression puis à concasser les comprimés ainsi obtenus et à « sphéroïdiser » les granulés par brassage dans un mélangeur. Un lubrifiant peut être ajouté à la poudre à hauteur de 0,2 à 0,3 % afin de faciliter le pressage des pastilles crues, qui ont une masse volumique comprise entre 5,9 et $6,3 \text{ g/cm}^3$.

Les pastilles crues sont placées dans des nacelles en molybdène et frittées pendant 4 h à $1700 \text{ }^\circ\text{C}$ sous atmosphère réductrice (hydrogène) dans un four continu. Après frittage, les pastilles (qui forment un léger diabol) sont rectifiées afin d'assurer leur cylindricité et d'obtenir le diamètre spécifié à +/- une dizaine de microns.

Pour garantir le respect des spécifications, de nombreux contrôles soit systématiques, soit par prélèvement d'échantillons, sont réalisés à l'issue de chacune des étapes de la fabrication :

- Contrôles visuels : les pastilles ne doivent pas avoir d'éclats ;
- contrôles dimensionnels : diamètres, longueur, conicité, évidements, chanfreins ;
- mesure des densités hydrostatique et géométrique (porosité ouverte très faible : $< 0,1 \%$) ;
- contrôles chimiques : O/U, impuretés, teneur en U 235 ou en Pu ;
- test de stabilité thermique (recuit de 24 h à la température de frittage) pour s'assurer que la densification additionnelle pendant ce test reste modeste.

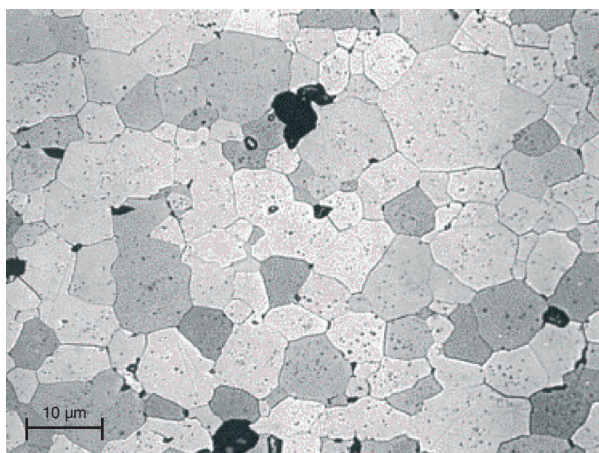


Fig. 8. Micrographie d'une céramique UO_2 après attaque chimique révélant les grains.

Des contrôles sont également réalisés afin de renseigner certaines grandeurs, même si celles-ci ne sont pas spécifiées. Ainsi, des métallographies (fig. 8) donnent accès à la taille des grains de la céramique (généralement de l'ordre de $10\ \mu m$) et à la morphologie de la porosité résiduelle.

Fabrication des pastilles de MOX (oxyde mixte uranium - plutonium)

Après traitement du combustible UO_2 irradié, la séparation de l'uranium et du plutonium aboutit à l'obtention de plutonium sous forme oxyde PuO_2 ; cet oxyde de plutonium est obtenu par calcination à $450\ ^\circ C$ de l'oxalate provenant de la précipitation du nitrate de plutonium par l'acide oxalique. La poudre de PuO_2 (fig. 9) a une surface spécifique élevée ($> 6\ m^2/g$).

Le procédé de fabrication mis en œuvre dans l'usine MELOX en France (et précédemment en Belgique) pour la fabrication du MOX est le procédé MIMAS (*Micronized MASTer blend*) : un mélange-mère de poudre UO_2 et PuO_2 (avec une teneur en PuO_2 de 25 à 30 %) est broyé dans un broyeur à boulets ; on obtient ainsi un mélange intime des deux poudres, très fines, et qui peuvent se ré-agglomérer. Ce mélange subit ensuite un tamisage forcé qui permet de garantir l'absence de gros agglomérats, puis il est dilué avec de l' UO_2 afin d'obtenir la teneur en plutonium visée (5 % à 10 %).

Il existe d'autres procédés de fabrication des pastilles d'oxyde mixte uranium plutonium, notamment celui consistant à

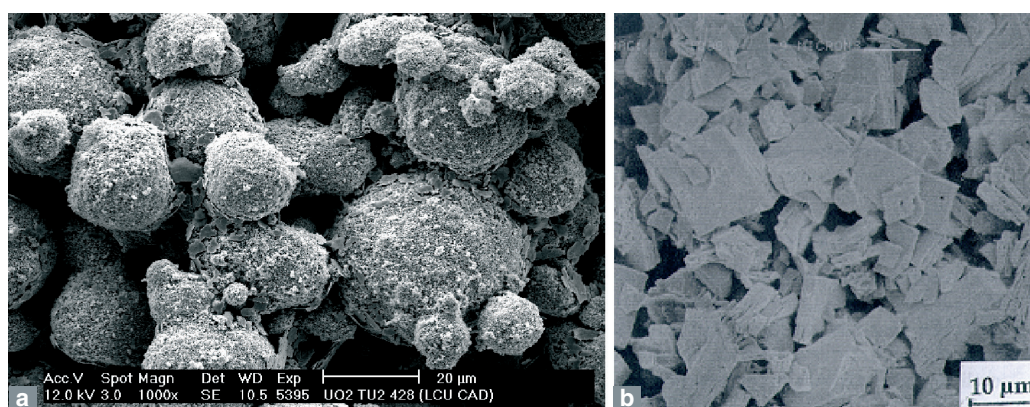


Fig. 9. Photographies au MEB montrant les agglomérats de poudres d' UO_2 ADU (ou TU2) et PuO_2 actuellement utilisées dans la fabrication des combustibles MOX à l'usine MELOX.
a. Poudre d' UO_2 TU2 - b. Poudre de PuO_2 .

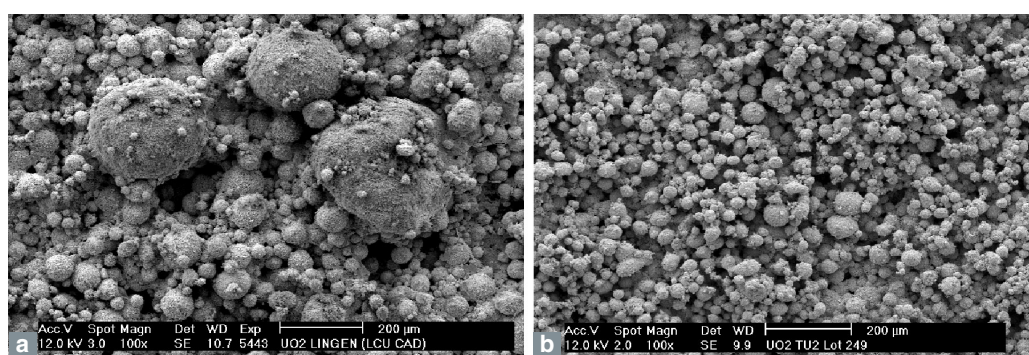


Fig. 10. Photographies au MEB montrant des agglomérats de poudres UO_2 voie sèche comparés à ceux de la poudre d' UO_2 TU2.
a. Poudre d' UO_2 voie sèche (AREVA ANF) - b. Poudre d' UO_2 voie humide TU2.

mélanger directement les poudres UO_2 et PuO_2 à la teneur visée en plutonium. Au début des fabrications industrielles, des pastilles de MOX ont été fabriquées à Cadarache par le procédé COCA (CObroyage CAdarache) adapté directement du procédé utilisé pour les fabrications des pastilles oxydes mixtes des réacteurs à neutrons rapides (Phénix et Super-Phénix). Le MOX fabriqué en Grande-Bretagne utilise un procédé comparable, appelé SBR (*Short Binderless Route*), de mélange et broyage de la totalité des poudres.

Les poudres ainsi obtenues sont transformées en pastilles par pressage, étape récemment modélisée au CEA afin de minimiser les rebuts de fabrication et le volume des poudres de rectification à l'usine MELOX.

Pour limiter le gradient de densité présent au sein des comprimés crus, il faut diminuer les frottements latéraux entre la poudre et les matériaux de matrices de presse. Les tests effectués sur plusieurs matériaux montrent qu'un revêtement de TiC permet de diminuer le coefficient de frottement poudre/matrice d'environ 20 %.

Après pressage, les pastilles de MOX sont frittées pendant 4 h à 1 700 °C. À la différence de l' UO_2 , le frittage du MOX n'est pas effectué sous atmosphère réductrice, mais sous un mélange argon-hydrogène légèrement humidifié ($20 < H_2/H_2O < 50$) afin d'imposer dans le four de frittage un potentiel d'oxygène permettant d'obtenir un oxyde $(U,Pu)O_2$ dont le rapport Oxygène/Métal est proche de la composition stœchiométrique.

Après frittage, comme les pastilles UO_2 , les pastilles MOX sont rectifiées et contrôlées.

En raison du procédé de fabrication, la répartition du plutonium n'est pas homogène : les observations à la microsonde (fig. 12) montrent qu'une partie du plutonium se trouve dans des agglomérats dont la teneur en plutonium, supérieure à 20 %, est proche de celle du mélange-mère. La R&D se poursuit dans différentes voies pour améliorer l'homogénéité de répartition du plutonium, via l'utilisation d'**additifs de frittage*** tels que le chrome ou le soufre (voir, p. 47, le chapitre sur les céramique UO_2 et MOX avancées).

Modéliser le compactage des poudres pour mieux contrôler la forme et la densité des pastilles de combustible

Le code PréCAD décrit le comportement mécanique sous charge d'un milieu pulvérulent, selon une loi élasto-plastique. L'acquisition des données poudres (courbes de compressibilité, de frittabilité, module d'Young, indice de fluidité, coefficient de frottement poudre/matrice...) a permis d'alimenter la base de données du code et ainsi de calculer les gradients de densités

dans les pastilles, les retraits différentiels de frittage et la forme finale de la pastille (fig. 11). Il est ainsi possible d'optimiser le cycle de pressage afin de minimiser l'amplitude du diabolo (écart de forme de la pastille frittée par rapport à la forme cylindrique) et donc le volume des poudres de rectification.

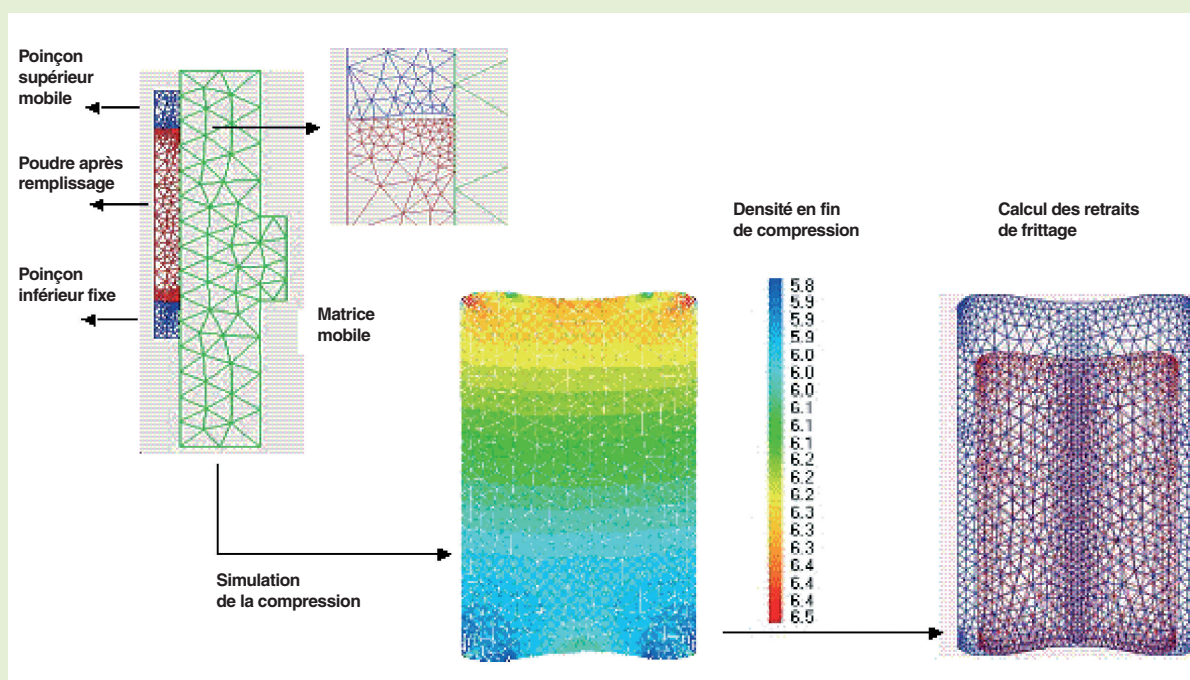


Fig. 11. Illustration des études sur le pressage des poudres MOX, utilisation de la modélisation aux éléments finis (code PRECAD), Cas d'un pressage simple effet.

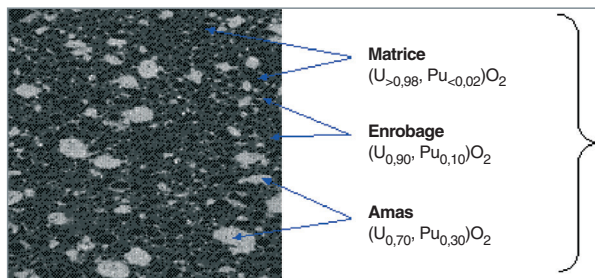


Fig. 12. Cartographie X du plutonium à la microsonde sur un combustible MOX, montrant les zones à différents teneurs en plutonium : matrice UO_2 , phase d'enrobage et amas plutonifères.

Fabrication des gaines

Les pastilles sont ensuite introduites dans des tubes d'environ 4 m de long, 9,5 mm de diamètre externe, fermés aux deux extrémités par des bouchons soudés. L'intérieur des crayons ainsi constitués est mis sous pression d'hélium (15 à 34 bars selon les cas); à cet effet, le bouchon supérieur comporte un queusot qui est fermé par soudage à l'arc.

Le matériau de gainage le plus couramment utilisé en REP est le Zircaloy-4, alliage de zirconium (transparent aux neutrons) contenant de l'étain (1,2 – 1,7 %), avec un peu de fer (# 0,2 %), de chrome (# 0,1 %), et d'oxygène (# 0,1 %). Ces éléments d'alliage ont pour objectif d'améliorer la résistance mécanique ainsi que la résistance à la corrosion aqueuse.

La fabrication des gaines comprend plusieurs étapes. Le lingot de départ est élaboré par fusion à l'arc, à partir de l'éponge de zirconium additionnée des éléments d'alliage. Deux ou trois fusions sont nécessaires pour obtenir des lingots homogènes. Le lingot est mis en forme par forgeage en phase β vers 1 040 °C, puis il subit un traitement thermique toujours dans le domaine β suivi d'une trempe, dans le but d'homogénéiser et de réduire la taille des précipités.

La transformation de l'ébauche en tube de gaine se fait par filage à chaud de la billette préalablement forée, puis par une série de laminages à froid suivis de recuits intermédiaires sous vide ou sous atmosphère inerte toujours en phase α (vers 700 °C).

Le zirconium ayant une structure cristalline hexagonale, les déformations imposées au matériau pendant les étapes de la transformation introduisent dans le tube une texture plus ou moins marquée suivant les conditions. Cette texture joue un rôle sur les propriétés mécaniques, ainsi que sur la répartition et l'orientation des précipités d'hydrure de zirconium, en cas d'hydruration de la gaine.

Le traitement thermique final permet d'avoir des tubes à l'état détendu si le traitement est effectué en dessous de 500 °C, température de début de recristallisation, ou à l'état recristallisé si l'on dépasse cette température.

Les gaines subissent ensuite des contrôles systématiques dimensionnels et ultrasoniques, ainsi que des contrôles destructifs sur échantillons (analyse chimique, texture, propriétés mécaniques, tenue à la corrosion).

Le Zircaloy 4 ayant montré ses limites, notamment vis-à-vis de la résistance à la corrosion, de nouveaux matériaux de gainage ont été développés ; en particulier l'alliage zirconium niobium M5® est en passe de remplacer le Zircaloy-4 car sa tenue à la corrosion lui est très supérieure.

L'assurance de la qualité impose aussi la plus grande « traçabilité » des matières, des matériels et des opérations, c'est-à-dire l'aptitude à reconstituer l'historique et à garantir l'origine de chaque constituant de l'élément combustible.

► Bibliographie

Y. GUÉRIN et J. HENCKES, *Conception et fabrication de combustibles à base d'uranium*. Techniques de l'Ingénieur (à paraître).

J.-L. NIGON et G. LE BASTARD, *Fabrication des combustibles au plutonium pour les REP et les REB*. Techniques de l'Ingénieur BN 3 635.

Yannick GUÉRIN,

Département d'études des combustibles

Le comportement des combustibles UO_2 et MOX en réacteur

Conditions d'irradiation en fonctionnement nominal

La plupart des phénomènes qui se développent en cours d'irradiation dans le combustible dépendent de la température et de la densité de fission locale ; ils sont donc directement corrélés à l'évolution de la puissance linéique durant les différents cycles d'irradiation.

Dans un cœur REP, la puissance totale reste quasiment constante au cours d'un **cycle d'irradiation***, mais la puissance linéique dans un crayon varie axialement du bas en haut de la colonne fissile et varie également dans le temps. Intégré sur la durée du séjour en réacteur, la distribution axiale de **taux de combustion*** en fin d'irradiation est relativement uniforme sur une grande partie de la hauteur de la colonne fissile (baisse seulement au voisinage des extrémités hautes et basses).

Les crayons combustibles fonctionnent, en régime nominal, à des puissances linéiques moyennes comprises entre 150 et 250 W/cm. Un exemple d'évolution de la puissance linéique moyenne d'un crayon UO_2 qui a subi une irradiation de 5 cycles d'irradiation est présenté sur la figure 13 : l'incrément de puissance au deuxième cycle est lié à un déplacement de l'assemblage vers le centre du cœur ; sous l'effet de l'épuisement du combustible, la puissance moyenne tend ensuite, logiquement, à diminuer au cours du temps.

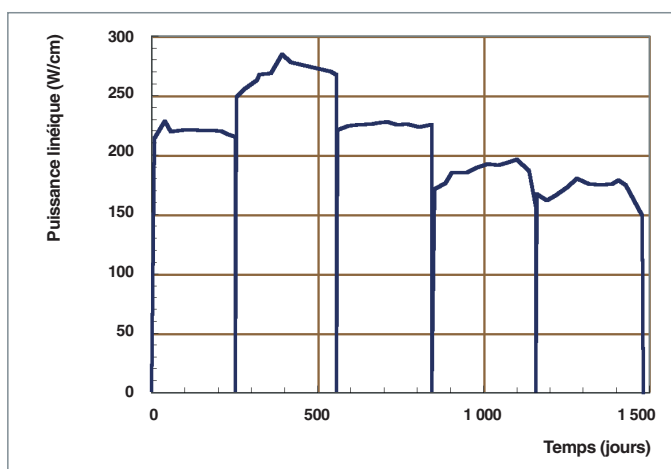


Fig. 13. Exemple d'évolution en fonction du temps de la puissance linéique moyenne d'un crayon UO_2 irradié 5 cycles dans un réacteur à eau pressurisée.

La pression nominale de l'eau du circuit primaire est de 155 bars, la température d'entrée dans le cœur du réfrigérant est d'environ 280 °C.

Production et évacuation de la chaleur

En réacteur, le principal phénomène intervenant dans le combustible est la fission de noyaux lourds. C'est de ces fissions que découle tout le comportement du matériau. Ces fissions produisent quelques centaines de types de nucléides, en majorité radioactifs et à vies courtes ainsi que de l'énergie, majoritairement sous forme d'énergie cinétique des produits de fission, mais aussi sous forme de rayonnements β et γ . L'énergie cinétique des produits de fission est dissipée sous forme de chaleur pendant l'implantation des produits de fission dans le matériau.

Cette implantation se produit par « recul » des produits de fission dans le matériau sur une distance de 5 à 8 micromètres (μm) et conduit à la formation d'un grand nombre de défauts dont la recombinaison dépend de la température du combustible. Très énergétique, la trace laissée par cette implantation est dénommée « **pointe de fission*** ».

La répartition de cette production de chaleur n'est pas homogène dans la pastille. En effet, la création de Pu 239 par capture, sur l'uranium 238, de neutrons **épithermiques*** est très marquée en périphérie de pastille, par effet d'**autoprotection*** (pour les neutrons ayant l'énergie correspondant aux résonances, la **section efficace*** de capture est si élevée qu'ils ne peuvent atteindre le centre des pastilles). Cette surconcentration de plutonium en périphérie, qui s'établit progressivement au cours de l'irradiation, conduit à un creusement, de la périphérie vers le centre, de la répartition radiale de puissance.

La conductivité thermique du combustible oxyde vierge est peu élevée. De l'ordre de $4,5 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ à 450 °C et essentiellement phononique, elle diminue pour atteindre un minimum ($\sim 2 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$) autour de 1 500 °C puis réaugmente grâce à une contribution électronique croissante. Cette conductivité thermique diminue avec la porosité. La conductivité du combustible MOX est environ 10 % plus faible que celle du combustible UO_2 . Au cours de l'irradiation, l'apparition des produits de fission et la formation de défauts d'irradiation conduisent, en outre, à une dégradation progressive mais très nette de la conductivité thermique.

L'énergie dissipée au sein du matériau et les conditions d'échange avec le caloporteur à la surface de la gaine conduisent à des températures et à un gradient thermique radial élevés dans le combustible. La différence de température entre le centre d'une pastille et sa périphérie, qui varie fortement au cours d'une irradiation (sous l'effet combiné de plusieurs paramètres, notamment des variations de puissance, de la diminution de la conductivité thermique, de la diminution du jeu pastille gaine et de la formation de couches oxydées en surface de gaine), est de l'ordre de 500 à 700 °C.

Phénomènes intervenant en début d'irradiation

Les dilatations différentielles entre centre et périphérie induisent des contraintes tangentielles de traction. Comme toute céramique, les pastilles combustibles ont un comportement fragile jusqu'à une température d'environ 1 400 °C ; le dépassement de la limite de résistance à la rupture du matériau est, en général, atteint dès la première montée en puissance et conduit à une fissuration radiale et transversale de la pastille. Cette fissuration se poursuit sur les fragments nouvellement

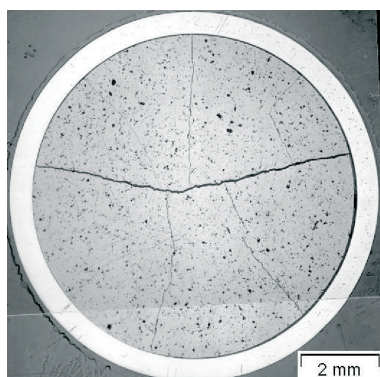


Fig. 14. Coupe radiale d'un combustible UO_2 irradié 1 cycle. On note la formation des fissures radiales, le jeu pastille-gaine qui n'est pas encore fermé et le déplacement des fragments.

formés. La figure 14 montre une coupe radiale d'un combustible UO_2 irradié 1 cycle et qui présente cette fissuration.

De plus, sous l'effet des contraintes élastiques induites par le champ de température, les pastilles prennent une forme dite « de diabolo ». Dès le début de l'irradiation, l'interaction des

pointes de fission avec des pores du matériau disperse des lacunes dans le réseau. La diffusion de ces lacunes jusqu'aux joints de grains conduit à une densification globale du matériau. Cette densification se traduit notamment par une forte diminution de la densité de petits pores (< 2 à 3 μm). L'amplitude de ce phénomène, qui dépend de la microstructure initiale et notamment de la fine porosité, conduit à une variation de densité et donc de volume de l'ordre du %.

Dans le même temps, la création par fission de deux atomes à partir d'un seul noyau lourd conduit à un gonflement du combustible. Celui-ci se poursuit tout au long de l'irradiation. Ce gonflement dépend des conditions d'irradiation, en particulier de la température. En effet, tous les **produits de fission*** ne participent pas de la même façon à ce gonflement, suivant la

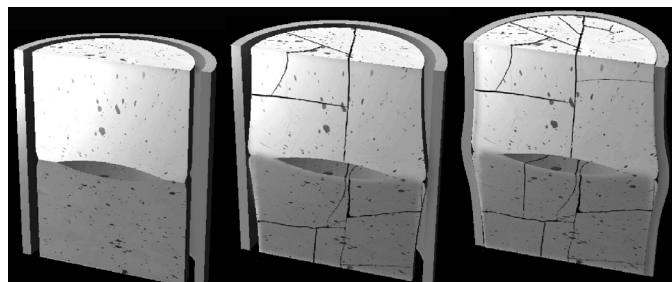


Fig. 15. Schématisation de la fracturation des pastilles, de la mise en diabolo et de l'évolution du jeu entre les pastilles et la gaine au cours de l'irradiation.

phase qu'ils forment ou la position qu'ils occupent en sursaturation dans la matrice. De plus, certains produits de fission sont gazeux (xénon et krypton) et peuvent, dans certaines conditions, former des bulles qui participent au gonflement global des pastilles. Pour les conditions nominales d'irradiation, ce gonflement est d'environ 0,06 à 0,07 % par GWj/t (unité exprimant le taux de combustion).

La combinaison des effets opposés de la densification et du gonflement se traduit, dans un premier temps, par une contraction du matériau, puis après environ 15 GWj/t, seul le gonflement est sensible, la densité initiale étant à nouveau atteinte entre 15 et 30 GWj/t. Ce gonflement du combustible, associé à de petits mouvements relatifs des fragments formés par la fissuration, ainsi qu'à la réduction du diamètre de la gaine par **fluage*** sous irradiation, du fait de la pression du caloporteur, conduit à une fermeture du jeu combustible / gaine. Un contact de plus en plus étendu se développe donc entre le combustible et la gaine. Il est presque complet autour de 30 GWj/t. Le diamètre de gaine augmente alors à nouveau, suivant le gonflement du combustible. Ces évolutions géométriques sont illustrées figure 15.

Aux points de contact combustible / gaine, se développe, sur la face interne de la gaine, une couche de zircone d'environ 8 μm d'épaisseur, par diffusion de l'oxygène du combustible.

La forme en « diabolo » du combustible, le rattrapage du jeu et la formation de la couche de zircone interne conduisent à un accrochage entre la gaine et le combustible qui ne se séparent plus, même lors des arrêts du réacteur.

Comportement des gaz de fission [1, 2]

Tout au long de l'irradiation, des produits de fission gazeux (xénon et krypton) sont relâchés par la céramique vers les volumes libres du crayon. Le premier des phénomènes impliqués dans ce relâchement est la diffusion athermique et l'éjection des atomes de produits de fission gazeux aux surfaces libres du combustible, par les cascades de déplacements causées par l'implantation d'un produit de fission. Ce phénomène

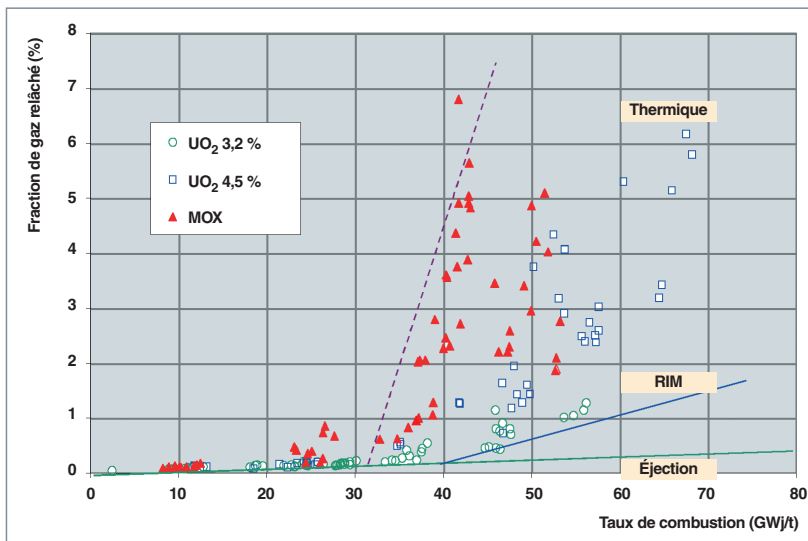


Fig. 16. Évolution en fonction du taux de combustion de la fraction de gaz de fission relâchés dans des crayons REP UO₂ et MOX.

est en augmentation constante, au cours de l'irradiation, du fait de l'augmentation de la teneur en produits de fission gazeux du combustible et de l'évolution des surfaces libres. Pour des conditions nominales d'irradiation, c'est le principal mécanisme de relâchement des gaz de fission mis en jeu jusqu'à environ 30 GWj/t. Selon ce mécanisme, seuls les PF produits tout près d'une surface libre peuvent être éjectés. Ils représentent une traction faible de la totalité des PF gazeux produits dans le combustible. Au-delà de 30 GWj/t, le taux de relâchement des gaz augmente plus vite et dépend nettement

élevée à fort taux et températures à cœur des pastilles plus fortes, du fait de la conductivité thermique plus faible). Cet accroissement de pression est un des paramètres physiques limitant l'extension des taux de combustion. La R&D actuelle vise à développer de nouvelles microstructures du combustible capables d'assurer une meilleure rétention des gaz de fission – augmentation de la taille des grains et/ou ajout d'additifs aux joints de grains –, notamment en situation accidentelle.

Évolution de la microstructure

Enfin, lorsqu'une quantité élevée de produits de fission et de défauts d'irradiation se sont accumulés dans le matériau, en particulier dans les régions les moins chaudes de la pastille pour lesquelles le recuit des défauts et la diffusion des produits de fission est la plus faible, les grains de l'oxyde se subdivisent, formant des grains d'environ 0,2 μm à partir des grains initiaux d'environ 10 μm de diamètre [3]. Lors de cette restructuration, l'essentiel du gaz des zones touchées forme des bulles d'environ 0,6 μm de diamètre. La figure 17 montre une observation au microscope électronique à balayage d'une zone restructurée. Lorsque, dans une zone, cette restructuration est complète et vient d'avoir lieu, la porosité induite par la formation des bulles est de l'ordre de 10 % du volume de matière. Il se forme aussi des précipités de produits de fission métalliques. La microstructure nouvellement formée est appelée HBS (*High Burnup Structure*). Lors de cette restructuration, le relâchement des gaz de fission est faible. On trouve cette structure en périphérie des combustibles UO₂ (« effet RIM* »), du fait de la faible température et de la concentration très élevée en produits de fission liée à la formation périphérique de plutonium par **capture*** des neutrons **épithériques*** par l'uranium. Ce phénomène apparaît après 40 GWj/t.

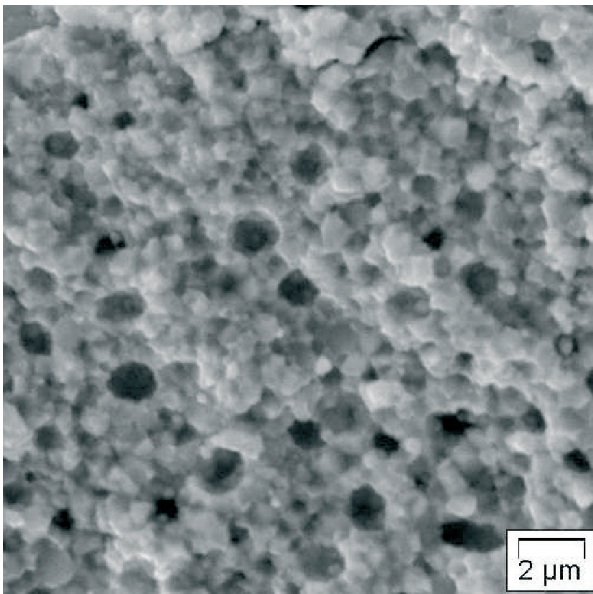


Fig. 17. Microstructure du combustible restructuré (HBS) Les grains initiaux d'une dizaine de microns ont été remplacés par des grains submicrométriques et des bulles de gaz de fission se sont formées.

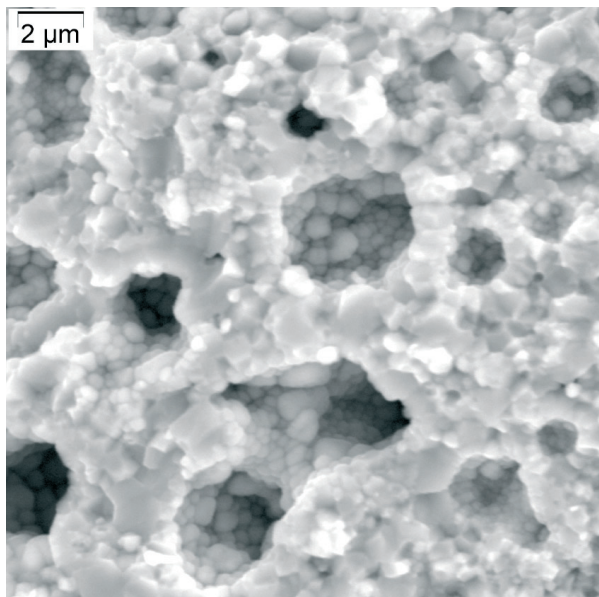


Fig. 18. Coalescence des bulles de la microstructure HBS dans une zone à très fort taux de combustion (180 GWj/t) dans un amas de combustible MOX.

Toutes ces évolutions du combustible, malgré leur ampleur, n'affectent pas l'intégrité de la gaine dans le domaine du fonctionnement normal.

► Références

[1] M. BOIDRON, Réunion SFEN « Forts taux de combustion » (16 janvier 2002).
 [2] Y. GUÉRIN, J. NOIROT, D. LESPIAUX, C. STRUZIK, P. GARCIA, P. BLANPAIN, G. CHAIGNE, *Microstructure evolution and in-reactor behaviour of MOX fuel*. Proceedings of the International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, USA, 10-13 avril 2000.
 [3] J. NOIROT, L. DESGRANGES, J. LAMONTAGNE, *Detailed characterisations of High Burn-up Structures in oxide fuels*, Journal of Nuclear Materials (2007), dsi : 10.1016/j.jnucmat.2007.04.037.

Jean NOIROT,
 Département d'études des combustibles

On trouve aussi cette microstructure dans le combustible MOX hétérogène, dans et autour des amas riches en plutonium, sur à peu près la moitié périphérique de la pastille (qui représente les trois quarts de son volume). Dans ce type de combustible la restructuration intervient bien plus tôt dans l'irradiation, à cause de l'accumulation rapide de produits de fission et de défauts dans ces zones riches en plutonium fissile. Quand l'irradiation se poursuit, les nouveaux gaz formés viennent alimenter les bulles dont la taille augmente et qui coalescent (fig. 18).

La figure 19 donne, de façon synthétique et simplifiée, les phénomènes principaux intervenant dans le combustible sous irradiation et leurs interactions les plus marquées.

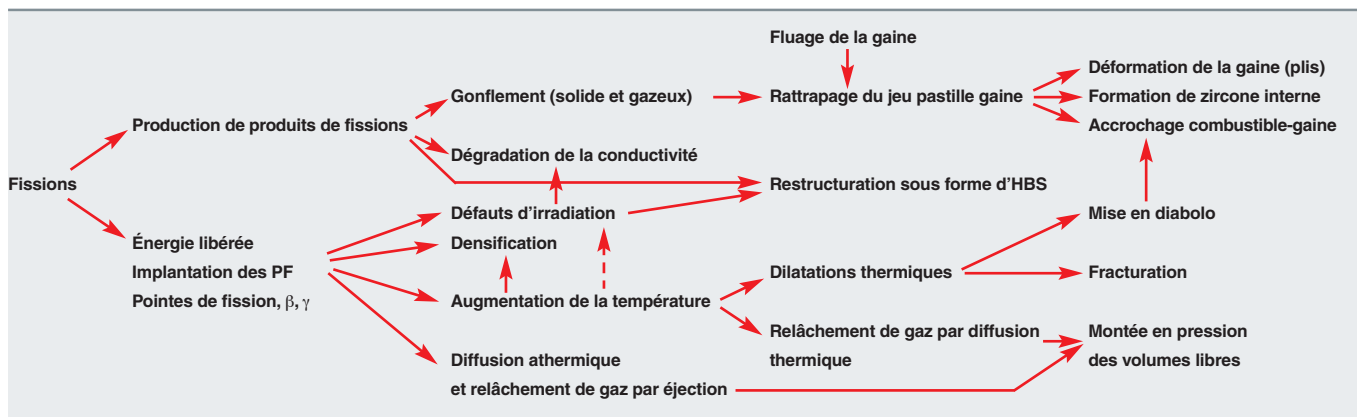


Fig. 19. Principaux phénomènes intervenant dans le combustible REP sous irradiation.

Comportement du combustible des réacteurs à eau en situation de perte d'étanchéité

La gaine, première barrière de confinement

La **gaine*** d'un crayon constitue la première barrière de confinement du combustible nucléaire, au cours de son irradiation en réacteur. L'apparition d'un défaut d'étanchéité sur celle-ci provoque :

- Le transport d'éléments chimiques spécifiques (les « produits de fission » ou PF), stables et radioactifs (iode, xénon, krypton...), dans le circuit primaire du réacteur ;
- le dépôt d'isotopes à périodes longues (césium, strontium, technétium...) voire exceptionnellement d'émetteurs alpha, sur les tuyauteries du primaire ou de certains circuits auxiliaires ;
- une élévation du niveau général d'irradiation de ce circuit, déjà causé par les produits d'**activation*** (produits de corrosion tels que cobalt, chrome, fer notamment).

Le défaut d'étanchéité est donc un enjeu essentiel au plan opérationnel pour un exploitant de centrale, car il a une influence directe sur le niveau d'exposition radiologique des travailleurs exploitant ou maintenant la centrale. Heureusement, cette situation se présente rarement. La fiabilité du combustible des réacteurs à eau légère est, en effet, très bonne. Le retour d'expérience montre que la fréquence globale d'apparition d'un défaut d'étanchéité sur les crayons irradiés est actuellement très basse (autour de quelques 10^6 par an, ce qui correspond à nettement moins d'un crayon non étanche par an et par tranche).

L'utilisation d'un combustible en situation de perte d'étanchéité est considérée comme faisant partie du fonctionnement normal d'un réacteur, lorsque celle-ci survient pendant le cycle en cours. Cela signifie que le réacteur poursuit généralement son exploitation, même si certaines conditions peuvent parfois lui être appliquées (arrêt du suivi de charge, par exemple). Les aggravations inacceptables de défauts sont rares dans la filière des réacteurs à eau. On peut rappeler ici que seulement deux tranches françaises ont interrompu prématurément leur cycle d'exploitation pour cause de défauts d'étanchéité, depuis la divergence de Fessenheim 1, premier REP 900 MWe du parc français, en 1977.

Toutefois, afin de limiter les cumuls de dose chez les intervenants, de limiter l'activité stockée ou rejetée, et de faciliter les

conditions d'intervention en arrêt de tranche et lors du démantèlement, la teneur du circuit primaire pour certains produits de fission (gaz rares et iode) ne peut dépasser un certain niveau absolu, ou une certaine amplitude de variation au cours d'un cycle. Ces seuils, fixés par l'Autorité de sûreté, sont définis par les Spécifications techniques d'exploitation « activité du circuit primaire ». À titre d'exemple, le seuil d'arrêt sous 48 h d'un réacteur REP français est fixé à :

- 100 000 MBq par tonne d'eau pour la somme des activités massiques des gaz rares, en cas de présomption de rupture de gaine sur du combustible à fort taux de combustion ;
- une élévation de l'activité massique en iode 134 de plus de 10 000 MBq/t par rapport au « bruit de fond » en I 134.

Le réacteur est équipé de moyens d'épuration pour limiter les niveaux d'activité du circuit primaire. Le circuit RCV (circuit de contrôle volumétrique et chimique) possède un dégazeur et un ensemble de filtres et de résines pour retenir les PF **sorbés*** ou dissous.

L'identification des assemblages porteurs de crayons non étanches s'effectue lors d'un contrôle spécifique à l'arrêt de tranche, appelé « ressuage ». Une analyse technico-économique permet alors de statuer sur le devenir de cet assemblage : réutilisation après avoir ôté le crayon défectueux (réparation), ou déchargement définitif.

Les causes de défaillance

La cause principale de défaillance a longtemps été la présence de corps migrants véhiculés par le fluide primaire (fig. 20). Des parades à la fabrication des assemblages (filtres fixés sur l'embout inférieur de l'assemblage) ont permis de réduire fortement cette cause externe. La majorité des causes primaires de défaillance correspondent maintenant à des phénomènes de type « *fretting* » pour les REP (frottement de la gaine contre le ressort de maintien des grilles ; voir chapitre « Le comportement mécanique de l'assemblage combustible », p. 51). Les défauts de fabrication constituent une cause marginale.

Tout changement de mode de gestion des combustibles (augmentation du taux de combustion ou configurations de cœurs très hybrides, par exemple) ou l'introduction de nouveaux combustibles en réacteur (nouvelles microstructures, combus-



Fig. 20. Corps migrant bloqué entre deux rangées de crayons d'un assemblage REP.

tibles à poisons consommables ou dopés,...) conduit à se reposer les questions du comportement en mode « non étanche » et de l'adéquation des spécifications techniques en vigueur. Cette connaissance est acquise grâce aux travaux de R&D dans les domaines expérimentaux et théoriques.

Les conséquences d'une défaillance

La phénoménologie du fonctionnement en mode « non étanche » mêle radiochimie et thermo-hydraulique dans des jeux annulaires combustible-gaine très étroits (quelques dizaines de micromètres à chaud), et sous fort gradient thermique (environ 150 °C). L'ouverture d'un défaut s'accompagne d'une entrée d'eau du primaire à l'état liquide. Le devenir de cette eau dépend essentiellement de la puissance linéique locale du combustible. À titre d'exemple, pour les REP :

- Pour une puissance faible (inférieure à 120 W/cm environ), la température de surface du combustible est inférieure à la température de saturation de l'eau à 155 bars. L'eau reste à l'état liquide et noie progressivement le jeu combustible-gaine. Le « bouchon d'eau » constitue un frein efficace à la migration axiale des PF (diffusion gaz-liquide pour les gaz, piégeage pour les iodes), et les niveaux de relâchement d'activité sont généralement faibles ;
- pour des puissances moyennes (de 120 à 170 W/cm environ), un régime diphasique s'installe, car l'eau se vaporise au contact du combustible, tout en formant un film de liquide sur la surface interne de gaine. Un mécanisme de vaporisation-condensation radiale s'installe, correspondant à une agitation interne violente. Le relâchement d'activité peut être élevé et très sensible aux paramètres de fonctionnement du réacteur.
- à forte puissance (au-dessus de 180 W/cm), l'intervalle pastille-gaine contient uniquement de la vapeur et les échanges axiaux internes sont plus lents. Par contre, le « terme-source » de rejet (c'est-à-dire la quantité d'éléments radioactifs susceptibles de s'échapper hors du crayon combustible) est important, lié à la fois à la puissance (taux de

création des produits de fission) et à la température de la pastille (coefficient de diffusion).

Ces manifestations thermo-hydrauliques locales sont toutefois modifiées par deux autres phénomènes :

- Les extrémités d'un crayon (quelques dizaines de cm) sont toujours « froides » car elles ne débitent que peu de puissance nucléaire. L'eau se condense et constitue un réservoir de liquide à ces endroits (**plénum*** supérieur, notamment). Quand l'équilibre de pression avec le primaire est atteint (arrêt de l'entrée d'eau), ce réservoir va se vider très lentement dans le jeu, par gravité et/ou vaporisation, et provoquer un entraînement des PF par la vapeur jusqu'au débouché du défaut ;
- la **radiolyse*** de l'eau (liquide ou vapeur), surtout due aux PF, fait disparaître progressivement celle-ci au profit de l'hydrogène (l'oxygène créé est essentiellement absorbé dans la pastille). L'hydrogène peut alors devenir un gaz vecteur pour transporter les PF gazeux. Il peut aussi, dans certaines conditions, précipiter dans la gaine sous forme d'hydrures de zirconium, allant même jusqu'à provoquer un nouveau défaut d'étanchéité par « hydruration secondaire », souvent beaucoup plus important que le défaut primaire (fig. 21).

Les niveaux de sortie des produits de fission hors des matrices fissiles sont exprimés de manière normalisée sous forme du « taux de relâchement » R/B (« Released/Born ») : Nombre d'atomes du PF i relâchés par seconde hors du combustible / Nombre d'atomes du PF i créés par seconde à l'équilibre radioactif. Représenté en échelle log-log, en fonction de

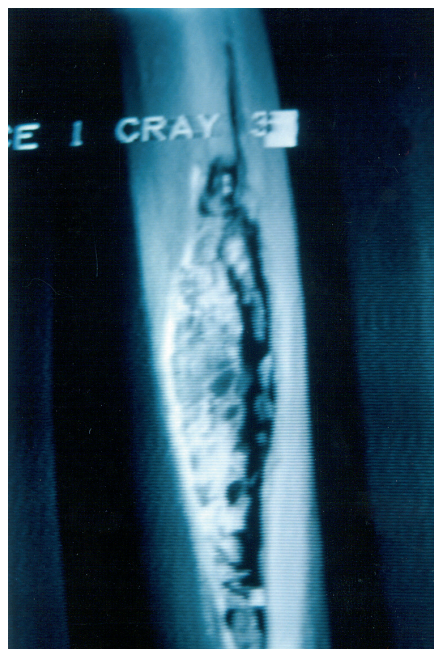


Fig. 21. Défaut d'étanchéité créé par hydruration.

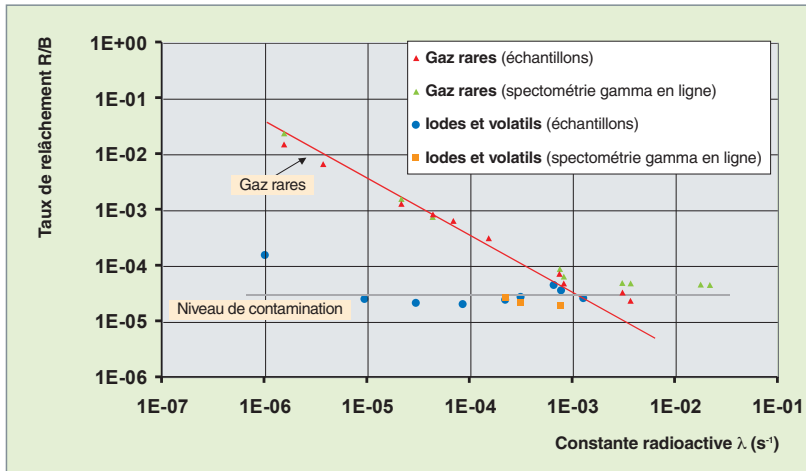


Fig. 22. Exemple de taux de relâchement mesuré sur un crayon de combustible expérimental à 150 W/cm.

la constante radioactive λ des corps, les valeurs des isotopes gazeux et des iodes se placent sur deux droites de pente négative (fig. 22). Le niveau et la pente de la droite renseignent sur la nature des phénomènes provoquant la sortie des PF. Par exemple, il est acquis expérimentalement qu'un crayon UO_2 fonctionnant à une puissance linéique moyenne de 200 W/cm montre un R/B (Xe 133) de 3 % environ, ce chiffre atteignant 7 % à 250 W/cm (fig. 23). Pour les pentes :

- Pente nulle (sortie indépendante de la période radioactive) : il s'agit d'une émission par recul direct d'un PF, suite à une fission survenant très près de la surface du combustible (à moins de 10 micromètres) ;
- pente $-0,5$: mécanisme de diffusion ;
- pente $-1,0$: mécanisme de déstockage brusque d'un réservoir de PF accumulé en cours d'irradiation.

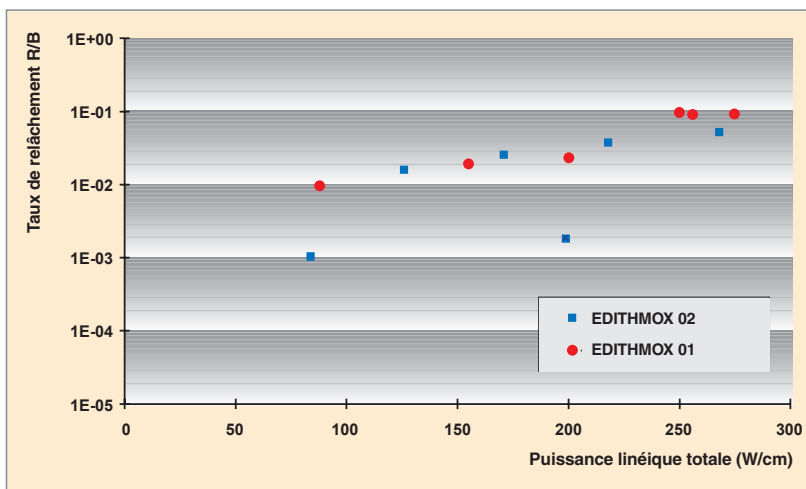


Fig. 23. Exemple d'évolution du taux de relâchement, en fonction de la puissance linéique (cas d'un crayon MOX neuf « 01 » et d'un crayon MOX fort taux « 02 »).

Au CEA, les taux de relâchement sont mesurés expérimentalement lors d'irradiations analytiques en réacteur de recherche [1, 2, 3], sur crayons expérimentaux courts refabriqués et parfois instrumentés (capteur de pression interne), ou lors d'expériences en cellule de laboratoire de haute activité sur des tronçons de colonne fissile. Le programme d'exams post-irradiatoires associé porte essentiellement sur le suivi de l'évolution de la microstructure de la matrice fissile, suite aux changements des conditions de fonctionnement : température plus élevée, présence de conditions oxydantes et d'espèces radiolytiques agressives, diffusion accélérée des produits de fission.

En parallèle à cette approche expérimentale, la modélisation s'effectue au CEA dans trois directions :

- La prédiction des niveaux de sortie des différents PF pour des conditions d'irradiation données, par la modélisation des phénomènes évoqués plus haut. L'outil de simulation employé (PROFIP) est utilisé pour prédire l'évolution des valeurs de l'activité en PF du circuit primaire et prévenir si les spécifications techniques risquent d'être atteintes ;
- le diagnostic de l'état du gainage en fonctionnement, à partir des niveaux d'activité observés dans le primaire. Cet outil d'assistance à l'exploitant permet de juger du nombre et de la gravité des défauts présents en cœur, détecte leur aggravation éventuelle durant le fonctionnement de la tranche et quantifie le cas échéant un relâchement de matière fissile. Le CEA utilise le module « Diagnostic » du code DIADEME ;

- la prédiction des activités des émetteurs à périodes longues et des émetteurs alpha fixés dans les circuits auxiliaires et dans les organes d'épuration (filtres et résines). Cet outil permet à l'exploitant de mieux gérer ses déchets et de connaître plus globalement l'évolution de la contamination de son installation sur le long terme, notamment dans la perspective du démantèlement. Le CEA emploie pour cela le module « RNVL » du code DIADEME.

► Références

[1]. H. SEVEON, C. LEUTHROT, P. CHÈNEBAULT, R. WARLOP, J.P. STORA. *Release of Fission Products by Defective Pressurized Water*

Reactor Fuel. International Meeting on Nuclear Reactor Safety, Karlsruhe, Allemagne, Septembre 1984.

[2]. D. PARRAT, Y. MUSANTE, A. HARRER. *Failed annular UO₂ Fuel in PWR conditions: the EDITH 03 experiment*. Proceedings of the International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Portland, Oregon, USA (mars 1997).

[3]. D. PARRAT, A. HARRER. *Failed high Burn-up MOX Fuel Performance: the EDITHMOX 02 analytical irradiation*. Proceedings of the International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, USA (10-13 avril 2000).

Daniel PARRAT,

Département d'études du combustible

La morphologie microscopique de la céramique combustible et son évolution sous irradiation. Migration et localisation des produits de fission dans les matrices UOX et MOX

Les caractérisations microstructurales du combustible REP avant son irradiation permettent de mettre en évidence les grains de la céramique. Elles montrent aussi une porosité dont le taux et le spectre de taille dépendent des méthodes de fabrication. Il est enfin possible de caractériser la présence d'impuretés, d'additifs de fabrication et, dans le cas des combustibles MOX, des hétérogénéités de répartition de matière fissile (amas riches en plutonium ; voir fig. 12 du chapitre « Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau »).

La céramique sous irradiation

Sous irradiation cette microstructure évolue :

- Les contraintes d'origine thermique induisent une fracturation de la pastille, ce qui forme de nouvelles surfaces libres ;
- les plus petits pores de fabrication disparaissent par remise en solution de **lacunes*** par les **pointes de fission*** (voir chapitre « Le comportement des combustibles UO₂ et MOX en réacteur ») ;
- le faciès des surfaces libres (surfaces des nouvelles fractures, surfaces des pores de fabrication, surfaces des extrémités de la pastille) est modifié par l'irradiation. La figure 24 illustre cette évolution de surface à l'extrémité d'une pastille,

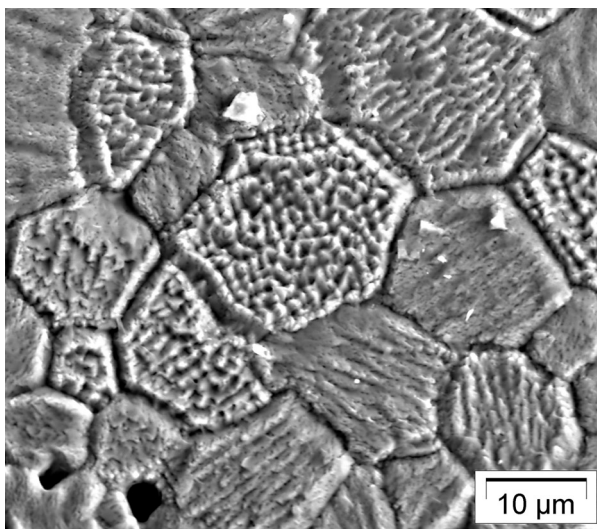


Fig. 24. Surface d'un évidement en extrémité de pastille, mise en évidence de l'évolution de la surface des grains sous irradiation et de la différence de cette évolution suivant l'orientation cristalline.

dans un évidement, observé au microscope électronique à balayage (MEB). On note que d'un grain à l'autre, c'est-à-dire suivant les orientations cristallographiques, le nouveau faciès peut être assez différent. On trouve aussi des surfaces de ce type sur certains joints de grains, signe d'une ouverture au moins partielle de ceux-ci.

- À haute température, c'est-à-dire lors de maintiens à puissances élevées (situations incidentelles ou accidentelles), il y a croissance cristalline en réacteur. Pour des températures supérieures à 1 800 °C, il apparaît même une migration des pores de fabrication qui remontent le gradient thermique par évaporation / condensation, entraînant la formation de gros grains très allongés dits « grains colonnaires » et même la formation d'un trou central sur l'axe des pastilles. Lors d'une irradiation normale en REP, il n'est cependant pas observé de modification de la taille des grains, et l'amplitude des phénomènes globaux de densification et de gonflement n'est pas assez élevée pour être vue par une mesure de taille de grains.
- Après leur implantation dans les grains, une partie des produits de fission reste en solution solide dans la matrice. C'est le cas, en particulier, des terres rares comme le néodyme. D'autres éléments, moins solubles voire peu solubles dans l'UO₂ ou l'(U, Pu)O₂, diffusent dans le matériau sous l'effet des pointes de fission et de la température. Il est généralement considéré trois termes à cette diffusion des produits de fission: le premier dit « athermique » est directement lié aux mouvements des atomes dans les pointes de fission et donc localement à la densité de fission; le second dit « thermique » correspond à la diffusion classique observée aussi dans les matériaux hors irradiation; le dernier terme est dit « mixte », il s'agit de la diffusion thermique accélérée par la présence accrue d'interstitiels et de lacunes sous irradiation. Suivant les sollicitations du matériau, il peut alors se former, sous irradiation, des précipités et des bulles de gaz. La présence de ces agrégats particuliers de produits de fission dépend des conditions d'irradiation, principalement du taux de combustion et de la température. Leur observation dépend surtout du moyen d'examen mis en œuvre. C'est le cas, en particulier, pour les précipités de produits de fission métalliques Mo, Tc, Ru, Rh, Pd et des produits de fission gazeux Xe et Kr. Pour fixer les idées, à 1 000 °C, pour une densité de fission de 10¹⁹ fissions m⁻³s⁻¹, le coefficient de diffusion D est de 5 10⁻²⁰m²/s (terme mixte prépondérant), ce qui correspond, pour un combustible en fin d'irradiation, à des distances caractéristiques \sqrt{Dt} de l'ordre du micromètre.

Bulles et précipités

Les observations au microscope électronique à transmission (MET) montrent l'existence dans le combustible, même à faible taux de combustion et pour des températures d'irradiation très variables, de bulles de gaz de fission de quelques nanomètres, avec des nombres de bulles par unité de volume entre 10^{23} et 10^{24} bulles/m³. La densité du xénon et du krypton dans ces bulles est très élevée, proche de la densité du gaz à l'état solide, et la pression peut être supérieure au GPa. La germination de telles nanobulles est continue pendant l'irradiation, cependant que la remise en solution du gaz de ces nanobulles par les pointes de fission entraîne leur disparition. Il s'agit donc d'un équilibre dynamique.

Une diffusion accélérée des gaz de fission en solution solide dans les grains, aux températures élevées, conduit à modifier cet équilibre et permet la formation de bulles plus grosses, de diamètre supérieur à 100 nm et observables au microscope électronique à balayage (MEB) et même au microscope optique. Là encore, la pression du xénon et du krypton dans ces bulles est très élevée, bien au-delà de la pression d'équilibre élastique de ces cavités. La température limite permettant l'observation de telles bulles de gaz de fission diminue nettement lorsque le taux de combustion augmente, c'est-à-dire principalement avec le taux de produits de fissions présents dans le matériau. Cette température limite est de l'ordre de 1 200 °C autour de 10 GWj/t de taux de combustion, mais n'est que de l'ordre de 700 °C à 50 GWj/t. De ce fait, sur un combustible irradié en base, mais à fort taux de combustion, on observe la formation d'une zone présentant une porosité bien visible au MEB ou au microscope optique et dont la limite, qui est fonction du taux de combustion, est une isotherme durant l'irradiation. Des précipités de produits de fission métalliques sont aussi observés dans ces zones présentant des bulles intragranulaires au centre des pastilles. La figure 25 illustre le type de microstructure dans ces zones de précipitation intragranulaire au centre d'un échantillon, observé au MEB à Cadarache.

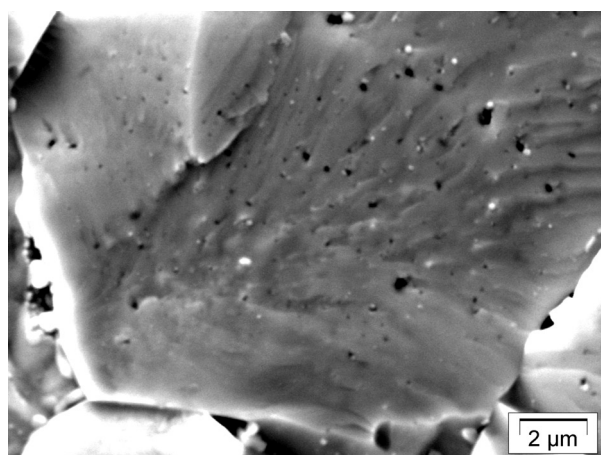


Fig. 25. Formation de bulles visibles au MEB dans les grains du combustible à fort taux de combustion au centre des pastilles.

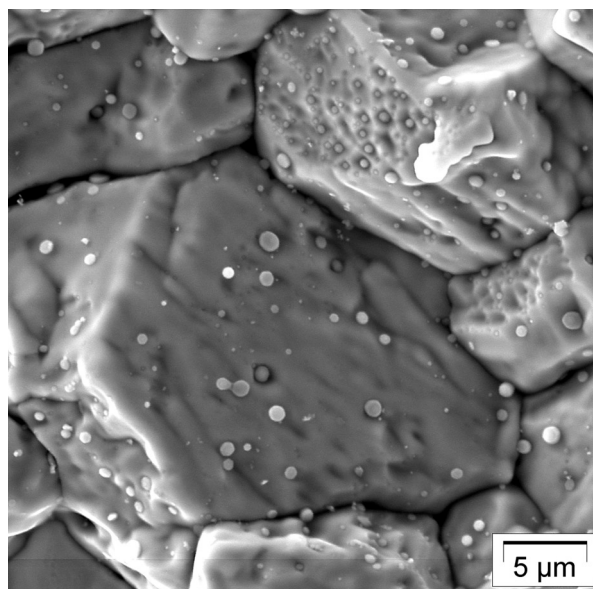


Fig. 26. La surface des grains d'un combustible MOX après irradiation. Les taches rondes sont des précipités de produits de fission métalliques.

La diffusion des gaz de fission en solution solide permet aussi leur accumulation aux joints de grains, sur lesquels la diffusion est même accélérée. De la même façon qu'au sein des grains, il peut se former, aux joints de grains, des bulles et des précipités métalliques. C'est par cette accumulation de gaz aux joints de grains et la formation de chemins d'évacuation sub-microniques, en particulier aux joints triples, que se fait le relâchement d'une grande partie des gaz de fission vers les volumes libres du crayon combustible. La figure 26 montre la surface de grains d'un combustible MOX homogène irradié à 45 GWj/t sur lequel on observe de nombreux précipités métalliques de grande taille. La forme arrondie des angles des

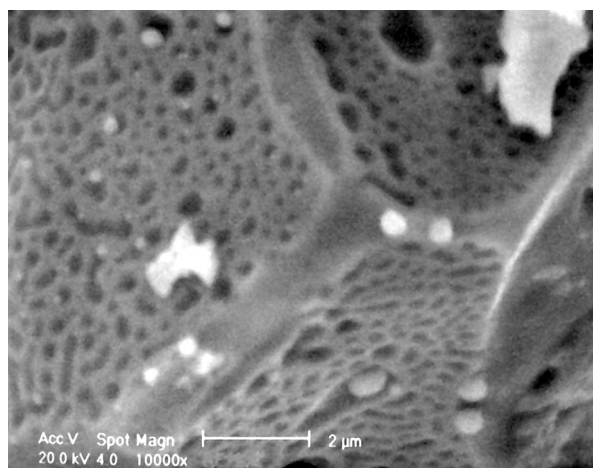


Fig. 27. Surface d'un grain après une rampe de puissance conduisant à des températures élevées au centre de la pastille combustible. Des bulles se sont formées aux joints de grains, certaines ont coalescé, des canaux se sont formés aux joints triples. Là encore, il y a des précipités métalliques.

Caractériser la céramique irradiée : des progrès récents au CEA Cadarache

Parallèlement aux développements de la modélisation qui devient de plus en plus physique (voir chapitre « La modélisation du comportement des combustibles »), d'importants progrès ont été accomplis au CEA dans la connaissance précise de la localisation des gaz de fission par la mise en œuvre de techniques complémentaires de caractérisation sur un même échantillon [1, 2, 3, 4, 5, 6, 7]: MEB, microsonde et sonde ionique (SIMS*) ainsi que de techniques de traitements thermiques (ADAGIO).

En particulier, la caractérisation au SIMS sur combustible irradié permet, pour la première fois, de voir et mesurer les gaz de fission contenus dans les bulles (voir figures 28 et 29), car le com-

buustible est abrasé sur plusieurs microns de profondeur pendant la mesure. Alors que cette mesure n'est pas possible à la microsonde (qui explore moins de 1 μm de profondeur), car les bulles visibles ont été percées lors de la préparation de l'échantillon. Grâce à cette technique, il a été possible de vérifier que les bulles de la zone de RIM contiennent encore la quasi-totalité des gaz de fission créés (voir fig. 29), même si la plus grande partie de ceux-ci échappent à la détection par la microsonde.

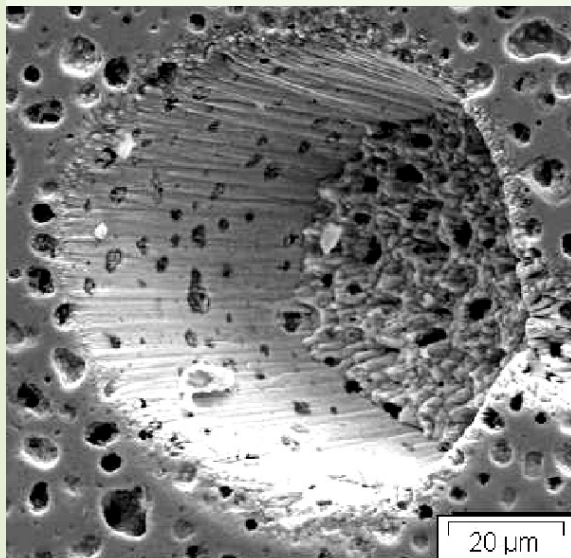
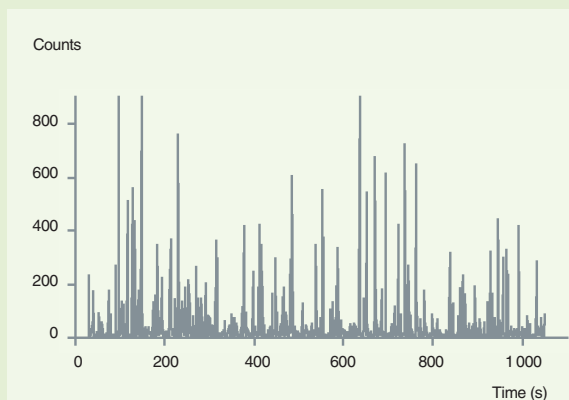


Fig. 28. Exemple de mesure au SIMS : profil en profondeur du xénon dans une zone de précipitation de gaz de fission sur une pastille d' UO_2 irradiée à 60 GWj/t. Chaque pic correspond à une bulle de gaz percée lors de l'abrasion du combustible.

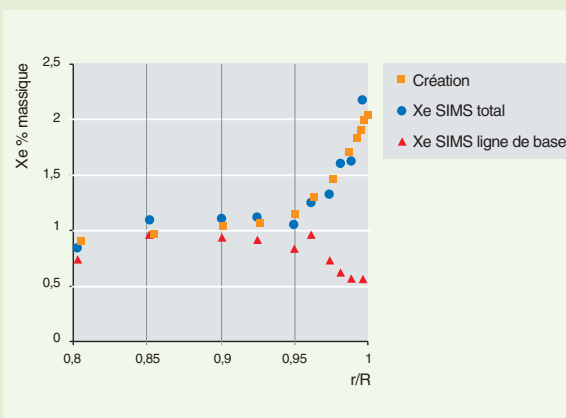


Fig. 29. Profils de concentration en xénon mesuré au SIMS en périphérie d'une pastille d' UO_2 irradiée à 60 GWj/t. L'essentiel du gaz sorti des grains (écart entre les carrés et les triangles) est retenu dans les bulles (cercles).

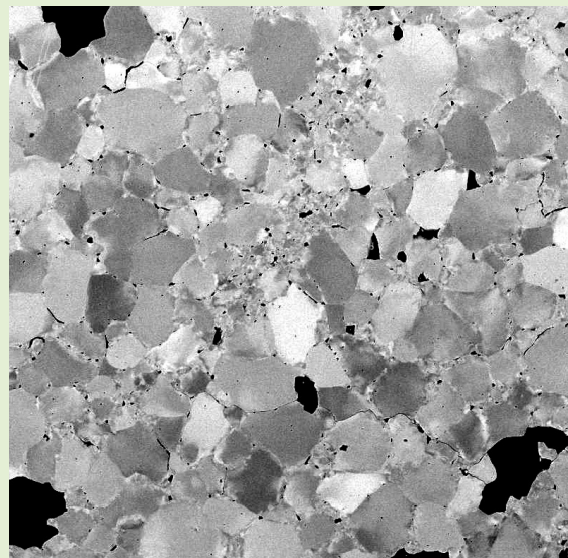


Fig. 30. L'examen au MEB permet de révéler les grains du cristal et d'établir un spectre des porosités ainsi que leur position intragranulaire ou sur le joint de grain.

grains laisse penser que les joints triples forment un chemin de sortie pour les gaz de fission qui y parviennent.

Aux hautes températures, comme lors de rampes, ou lors de simulations par des traitements thermiques hors réacteur, la diffusion thermique accélérée permet une alimentation plus importante des bulles qui peuvent coalescer. Cela est particulièrement spectaculaire aux joints de grains où les gaz de fission vont jusqu'à former des labyrinthes interconnectés avec, en particulier, des tunnels aux joints triples qui sont des voies de relâchement des gaz de fission hors de la pastille dans les volumes libres du crayon. La figure 27 montre une telle microstructure observée au MEB. On y trouve les canaux bien formés aux joints triples, la formation de bulles intergranulaires qui tapissent les joints de grains et qui sont partiellement interconnectés et, enfin, des précipités métalliques. Par ailleurs, lors de transitoires rapides, la sollicitation thermique des gaz déjà présents aux joints de grains peut conduire à l'ouverture de ceux-ci et au relâchement de ces gaz, alors que le gaz occlus à l'intérieur des grains est, au contraire, difficilement relâché.

La comparaison des mesures SIMS avec des explorations préalables au MEB (voir exemple, fig. 28) permet d'accéder à une valeur expérimentale de pression de gaz dans les bulles.

La poursuite de ces études sur des combustibles d'horizons divers permet d'affiner la complémentarité entre ces différentes techniques.

► Références

- [1] J. NOIROT, L. NOIROT, L. DESGRANGES, J. LAMONTAGNE, TH. BLAY, B. PASQUET, E. MULLER, *Fission gas inventory in PWR high burnup fuel: experimental characterisation and modelling. Proceedings of the International Meeting on LWR Fuel Performance*, Orlando, septembre 2004.
- [2] J. LAMONTAGNE, L. DESGRANGES, C. VALOT, J. NOIROT, TH. BLAY, I. ROURE, B. PASQUET, *Fission Gas Bubbles Characterisation in Irradiated UO₂ Fuel by SEM, EPMA and SIMS*, *Microchemica acta* 155 (2006) 1-2 183 187.
- [3] J. NOIROT, C. GONNIER, L. DESGRANGES, Y. PONTILLON, J. LAMONTAGNE, *LWR fuel gas characterization at CEA Cadarache LECA-STAR Hot Laboratory, TM IAEA Hot Cell Post Irradiation Examination Techniques and Poolside Inspection of Water Reactor Fuel Assemblies*, Buenos Aires, 2006.
- [4] L. DESGRANGES, C. VALOT, B. PASQUET, J. LAMONTAGNE, T. BLAY, I. ROURE, *Quantification of total xenon concentration in irradiated nuclear fuel with SIMS and EPMA*, *NIM B* (2007), dsi : 10.1016/j.nimb.2007.10.035.
- [5] C. VALOT, J. LAMONTAGNE, L. DESGRANGES, B. PASQUET, J. NOIROT, T. BLAY, I. ROURE, *Fission gases pressure evaluation in irradiated PWR fuels: complementarities of microanalyses techniques*, SEM, EPMA and SIMS, Hot Lab 2006 Jülich.
- [6] J. NOIROT, L. DESGRANGES, J. LAMONTAGNE, *Detailed characterisations of High Burn-up Structures in oxide fuels*, *J. Nucl. Mater* (2007), dsi : 10.1016/j.jnucmat.2007.04.037.
- [7] Y. PONTILLON, J. NOIROT, L. CAILLOT, E. MULLER, *Direct experimental evaluation of the grain boundaries gas content in PWR fuels: new insight and perspective of the Adagio technique. Proceedings of the International Meeting on LWR Fuel Performance*, San Francisco, Septembre 2007.

Jean NOIROT,
Département d'études des combustibles

La modélisation du comportement des combustibles

Tous les phénomènes intervenant en réacteur et décrits ci-dessus font l'objet d'une modélisation, et l'ensemble de ces modèles est regroupé dans un code de comportement du combustible capable de calculer toutes les grandeurs physiques aussi bien localement (températures, contraintes, déformations, répartition des gaz de fission, etc) que globalement (variations dimensionnelles, relâchement des gaz de fission, etc.). Cette modélisation est en effet indispensable :

- Pour comprendre et interpréter les mesures effectuées en réacteur et les observations lors des examens post-irradiatoires (les phénomènes interagissant étroitement les uns avec les autres) ;
- pour prédire le comportement de crayons standards ou expérimentaux soumis à des conditions de fonctionnement particulières ;
- pour orienter les recherches visant à améliorer les performances du combustible ;
- pour étayer les dossiers de sûreté démontrant le bon comportement des combustibles dans toutes les situations de fonctionnement.

Le travail de modélisation du comportement des combustibles REP, commencé au CEA et dans le monde il y a plusieurs décennies, était au départ assez empirique, s'appuyant principalement sur des lois simples issues des résultats expérimentaux. Progressivement, les codes ont ensuite essayé de traduire au plus près la physique sous-jacente à chacun des phénomènes décrits, et l'effort se poursuit aujourd'hui dans cette direction.

Dans les années 90 a été développé au CEA le code MÉTÉOR [1], qui est toujours largement utilisé. Ce code est dit 1 D 1/2, c'est-à-dire qu'il effectue le calcul d'un crayon découpé en n tranches ; chaque tranche découpée en p couronnes est calculée en axisymétrie, mais les interactions d'une tranche avec ses voisines sont prises en compte.

Sont ainsi notamment modélisés :

- La thermique en tous points du crayon : le profil radial de puissance, la conductivité thermique du combustible en chaque point, sa dégradation sous irradiation et l'influence de toutes les grandeurs (porosité, O/M, fissures, etc.), le

transfert de chaleur dans le jeu oxyde gaine et dans la gaine, la corrosion externe de la gaine ;

- la mécanique : les contraintes et déformation en chaque point sont calculées par un modèle aux éléments finis qui prend en compte la présence de nombreuses fissures dans les pastilles combustibles, la densification puis le gonflement du combustible, la croissance des gaines, et tous les phénomènes de visco-plasticité dans l'oxyde et dans la gaine ;
- le comportement des gaz de fission : le gonflement et le relâchement en conditions nominales et lors de transitoires opérationnels, avec prise en compte des modifications de structure (formation du RIM).

Le code traite l' UO_2 et le combustible avec **poison*** consommable ($UO_2 + Gd_2O_3$) ; un effort particulier a porté sur le développement de modèles capables de traiter le MOX élaboré avec le procédé MIMAS tout en prenant en compte l'hétérogénéité de répartition de la matière fissile. Il est validé par la comparaison des résultats des calculs et des mesures sur un grand nombre de grandeurs issues d'un grand nombre (> 300) de crayons standards et expérimentaux : grandeurs intégrales telles que allongements des crayons et des colonnes fissiles, pression interne, volume libre, fraction relâchée des gaz de fission, grandeurs plus locales telles que profil axial de déformations diamétrales et d'épaisseurs de corrosion des gaines, densité des pastilles, diamètres de précipitation des bulles de gaz ou épaisseurs de RIM, ou grandeurs mesurées *in situ* notamment températures mesurées en réacteur par un thermocouple à cœur des pastilles.

Au CEA, la R&D sur la modélisation se poursuit dans deux directions :

1. Une modélisation de plus en plus physique : ainsi, le modèle MARGARET [2, 3, 4] modélise le comportement des gaz de fission en prenant en compte l'ensemble des phénomènes physiques connus, depuis le comportement des bulles de gaz intragranulaires de taille nanométrique (germination, croissance, remise en solution des atomes de gaz par les pointes de fission, coalescence, migration des atomes de gaz, des lacunes et des bulles) jusqu'à celui des bulles intergranulaires de taille micrométrique, avant et après interconnexion de ces bulles et relâchement par percolation du gaz qu'elles contiennent. La validation de modèles aussi fins doit s'appuyer bien sûr toujours sur des grandeurs intégrales telles que le relâ-

chement des gaz de fission, mais surtout sur des observations quantifiées à une échelle microscopique et sub-microscopique, en particulier les variations en fonction du rayon des densités et tailles de bulles telles que mesurées au MEB avec analyse d'images, et les quantités de xénon observables à la microsonde et au **SIMS***.

Cette modélisation explore les confins de la connaissance actuelle aussi bien théorique que expérimentale. Elle utilise des moyens de caractérisation à l'échelle nanométrique, en particulier, le microscope électronique à transmission. Elle s'appuie sur le retour d'expérience de l'ensemble des programmes expérimentaux réalisés en partenariat CEA-EDF-AREVA, mais utilise également les avancées récentes de la recherche de base sur les matériaux, telles que les caractérisations au synchrotron ou les calculs ab initio (voir chapitre suivant).

2. Le développement de plate-forme informatique capable d'intégrer dans une même architecture, l'ensemble des modèles physiques développés sur les différents types de combustible. Ainsi, la plate-forme PLÉIADES [5] (codéveloppé par CEA et EDF) est capable de traiter les combustibles de réacteurs à eau, mais également les autres combustibles (réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium ou gaz, particules pour réacteurs à haute température, ou plaques de combustible pour réacteurs expérimentaux). De plus cette architecture thermomécanique aux éléments finis peut, selon les besoins, effectuer les calculs en 1 D, en 2 D, ou en 3 D. Cette dernière caractéristique est nécessaire notamment pour calculer correctement les champs de contraintes et déformations en cas d'interaction pastille-gaine (**IPG***) lors d'une rampe de puissance, car la mise en diabolé des pastilles induit des concentrations de contraintes au droit des interpastilles et des fissures radiales (voir chapitre « L'interaction pastille-gaine », p. 41).

Enfin une telle plate-forme a une structure informatique adaptée pour faciliter le couplage avec d'autres plate-formes de simulation, en particulier celles traitant de la thermohydraulique ou de la neutronique des cœurs. De tels couplages vont notamment permettre des avancées dans la prédiction du comportement des combustibles lors de situations accidentelles telles que l'Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (voir chapitre « Le combustible en situation accidentelle »).

► Références

- [1] C. STRUZIK, M. MOYNE, J.-P. PIRON, *High Burnup Modelling of UO₂ and MOX fuel with MÉTÉOR/TRANSURANUS version 1.5*, International Meeting on LWR Fuel Performance, Portland (1997).
- [2] L. NOIROT, C. STRUZIK, P. GARCIA, *A mechanistic fission gas behaviour model for UO₂ and MOX fuels*. International Seminar on Fission Gas Behaviour in Water Reactor Fuels, Cadarache (2000).
- [3] J. NOIROT, L. NOIROT, L. DESGRANGES, J. LAMONTAGNE, TH. BLAY, B. PASQUET, E. MULLER, *Fission Gas Inventory in PWR High Burnup Fuel: Experimental Characterization and Modelling*, International Meeting on LWR Fuel Performance, Orlando, Floride (2004).
- [4] L. NOIROT, *MARGARET: an advanced model on fuels*, Journal of Nuclear Science and Technology, v1.43 n°9, p. 1149 (2006).
- [5] D. PLANCQ, J.-M. RICAUD, G. THOUVENIN, C. STRUZIK, T. HELFER, F. BENTEJAC, P. THÉVENIN, R. MASSON, *PLÉIADES: A unified environment for multi-dimensional fuel performance modelling*, International Meeting on LWR Fuel Performance, Orlando, Floride (2004).

Yannick GUÉRIN,

Département d'études des combustibles

Modélisation des défauts et des produits de fission dans la céramique UO_2 par calculs *ab initio*

Comme nous venons de le voir, en plus d'une description de plus en plus physique du comportement du combustible, la modélisation est aussi capable d'aborder des échelles de plus en plus fines. La modélisation du comportement des gaz de fission, qui était réalisée naguère à l'échelle du grain (10 μm), s'intéresse désormais au sort des bulles de taille nanométrique qui jouent un rôle clé dans les mécanismes de migration du gaz. L'évolution des propriétés mécaniques des matériaux est directement liée au devenir des **défauts ponctuels*** créés par l'irradiation (essentiellement lors des cascades de déplacement engendrées par le recul des PF, en fin de parcours) : recombinaison des **lacunes*** et **interstitiels***, précipitation en boucles de **dislocations***. Le sort des produits de fission et de l'hélium produit par désintégration alpha, et, en particulier, leur aptitude à migrer dépendent des possibilités de mise en solution des atomes dans le cristal UO_2 .

La modélisation à l'échelle atomique

La modélisation à l'échelle atomique permet d'appréhender, à l'échelle quantique, les propriétés de la matière qui dépendent de la structure électronique (propriétés de cohésion, spectroscopiques ou mécaniques). Les modèles utilisés reposent tous sur la résolution d'équations décrivant les interactions entre noyaux et électrons constituant le système. L'objectif principal de ces calculs est de déterminer l'énergie correspondant à la géométrie la plus stable du système considéré. La méthode retenue, basée sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT), est dite « *ab initio* » car elle n'utilise que des grandeurs intrinsèques aux atomes, c'est-à-dire non paramétrées. La modélisation *ab initio* du combustible UO_2 présente deux difficultés principales. D'une part, les actinides sont difficiles à étudier théoriquement, en raison de leurs électrons 5f qui peuvent être plus ou moins localisés autour des noyaux. La description des systèmes présentant des électrons fortement corrélés constitue un sujet de recherche en soi. D'autre part, les systèmes à considérer pour prendre en compte les défauts et produits de fission sont de composition et de symétrie complexes. On peut simplifier le traitement de tels systèmes, constitués, en outre, d'éléments à grand nombre d'électrons, en ne considérant que les électrons de valence, seuls à intervenir dans les propriétés chimiques et de cohésion du solide. Pour l'uranium, cela revient à ne traiter que 14 électrons par atome, au lieu de 92. Par ailleurs, le développement des orbitales électroniques sur une base d'ondes planes permet d'avoir accès facilement à la position à l'équilibre des atomes autour de défauts.

Pour progresser dans la compréhension du comportement du combustible, il est donc indispensable de disposer d'éléments sur les propriétés et le comportement de la matière à l'échelle atomique.

Il n'est pas simple d'obtenir ces données par l'expérience, en raison des difficultés pour accéder aux échelles pertinentes. De nombreux phénomènes sont mis en jeu et leurs conséquences difficiles à évaluer séparément. Parmi les méthodes d'étude, la modélisation à l'échelle atomique est utilisée au CEA depuis 1996. L'objectif de ces études est la détermination précise des mécanismes de formation et de migration des défauts et des produits de fission dans le combustible ainsi que des énergies qui y sont associées.

Les calculs *ab initio*

Des calculs *ab initio* sur les composés d'actinides ont commencé avec des approximations telles que celles de la densité locale (LDA) et de la sphère atomique (ASA) [1]. Puis, des pseudopotentiels performants ont été développés pour les actinides et, en particulier, pour l'uranium [2,3]. L'association de ces pseudopotentiels et d'approximations de l'échange-corrélation plus sophistiquées, comme celle du gradient généralisé (GGA), ont permis d'obtenir des résultats précis sur la structure et l'énergie des défauts [4], ainsi que la localisation et la solubilité des produits de fission [5]. Depuis, la méthode *ab initio* PAW (*Projector Augmented Wave*) permet de modéliser des systèmes contenant une centaine d'atomes inéquivalents et, par conséquent, d'étudier des phénomènes plus complexes comme la migration de défauts.

L'apport de ces méthodes de calcul *ab initio* est de permettre de traiter séparément les différents types de défauts ponctuels ou produits de fission dans le matériau combustible et de déterminer pour chacun leur stabilité (énergie de formation ou d'incorporation), leur influence sur la structure cristalline et leur mécanisme de migration. Ces données peuvent servir de paramètres d'entrée pour des modèles empiriques décrivant le comportement du matériau sous irradiation à une échelle macroscopique. L'étude du comportement de défauts ponctuels et de la solubilité des gaz de fission et de l'hélium, en fonction de l'écart à la stœchiométrie du combustible UO_2 , est présentée ici.

Défauts ponctuels dans le dioxyde d'uranium

La modélisation des défauts est effectuée en considérant une maille de 96 atomes (huit mailles du sous-réseau cubique d'uranium) répété à l'infini dans l'espace pour constituer un solide périodique. Les défauts ponctuels, lacunes et interstitiels, sont introduits dans cette supercellule (voir figure 31, dans le cas d'une lacune d'uranium). Le cas idéal serait de pouvoir prendre en compte des mailles encore plus grandes pour s'assurer que les défauts entre des supercellules adjacentes n'interagissent pas. Une supercellule de 96 atomes est toutefois le maximum qui peut être considéré dans le formalisme présent, avec les ressources informatiques disponibles actuellement. Les calculs d'énergie totale sont effectués pour les interstitiels et lacunes d'uranium et d'oxygène. À partir des énergies du système contenant ces défauts, les énergies de formation des défauts pourront aussi être déterminées. Des résultats expérimentaux par diffraction de neutrons, réalisés dès 1964 [6], montrent que les interstitiels d'oxygène dans $\text{UO}_{2.12}$ sont localisés sur des sites décalés par rapport aux centres des cubes. Cependant, de premiers calculs *ab initio* n'ont pu mettre en évidence une telle distorsion [3] et, par conséquent, dans les calculs présentés ici, seul le site octaédrique (au centre du cube d'oxygène) est pris en compte pour les défauts interstitiels. De plus, pour des écarts à la stœchiométrie importants, les nombreux défauts interstitiels d'oxygène forment des amas [7], situation qui n'est pas encore prise en compte par les calculs *ab initio*.

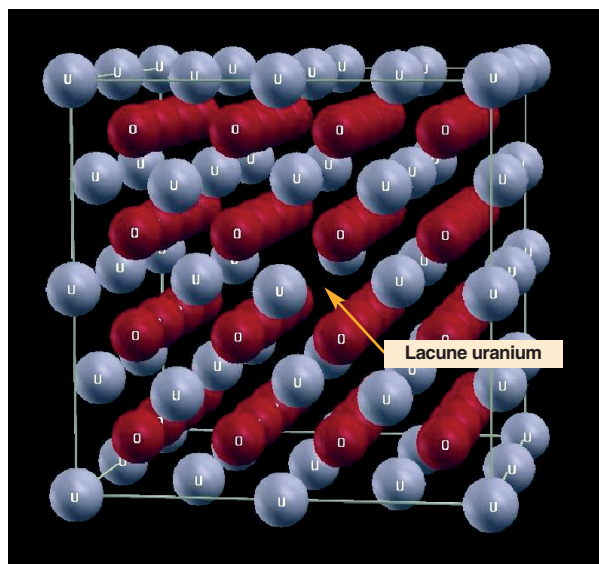


Fig. 31. Supercellule considérée pour modéliser les défauts ponctuels dans l' UO_2 , ici, par exemple, les lacunes d'uranium. Les atomes d'uranium sont représentés en bleu, ceux d'oxygène en rouge. Le site de l'atome d'uranium manquant (lacune) est repéré par la flèche.

Variation de volume de la maille d' UO_2

Pour chaque type de lacune et d'interstitiel, les positions des atomes et le volume de la supercellule ont été calculés par minimisation des contraintes dans le solide. Les variations du volume de la supercellule calculées montrent que la variation la plus importante est due aux défauts d'uranium, qui provoquent, dans le cas des interstitiels, un gonflement significatif, et, dans le cas des lacunes, une contraction mais d'ampleur moins significative. Les défauts d'oxygène ne provoquent pas de variation importante.

Défauts dans les cristaux

En cristallographie, les **défauts ponctuels** sont des défauts dans l'organisation des cristaux qui ne concernent que des nœuds isolés du réseau cristallin. Ils peuvent consister en une lacune (atome manquant, laissant un emplacement vide dans le réseau cristallin), ou en un interstitiel (atome « en trop » occupant une position intermédiaire dans le réseau). Quand un atome est déplacé de son emplacement normal pour occuper une position en interstitiel, il y a création d'une lacune et d'un interstitiel, dite « **paire de Frenkel*** ». Les **défauts de Schottky** sont des paires de défauts dans les cristaux ioniques. Un défaut de Schottky est l'association d'une lacune anionique et d'une lacune cationique.

Énergie de formation des défauts ponctuels dans l' UO_2

Les énergies de formation d'une lacune ou d'un défaut interstitiel sont obtenues à partir de l'énergie totale du système avec et sans le défaut. Ces énergies permettent, de plus, de déterminer les énergies de formation des paires de Frenkel (une lacune et un interstitiel de même type chimique) et des défauts de Schottky (une lacune d'uranium et deux lacunes d'oxygène). Les calculs *ab initio* prédisent la plus grande stabilité des paires de Frenkel d'oxygène par rapport aux paires de Frenkel d'uranium et aux défauts de Schottky. Ils montrent que les interstitiels d'oxygène ont une énergie de formation négative (-2,1 eV) par rapport à l'oxygène gazeux. Cela est en accord avec la facile oxydation d' UO_2 et confirme que la première étape de l'oxydation est l'incorporation d'oxygène dans les sites interstitiels du cristal [3].

Mécanismes et énergies de migration de défauts ponctuels dans l' UO_2

Les propriétés de transport atomique d'un élément chimique ou d'un défaut peuvent être appréhendées par la détermination de son chemin de migration le plus favorable et de la barrière d'énergie à franchir associée (énergie de migration). Une telle étude a été menée pour la migration de défauts oxygène et uranium dans UO_2 . En pratique, pour initier le calcul, on fixe

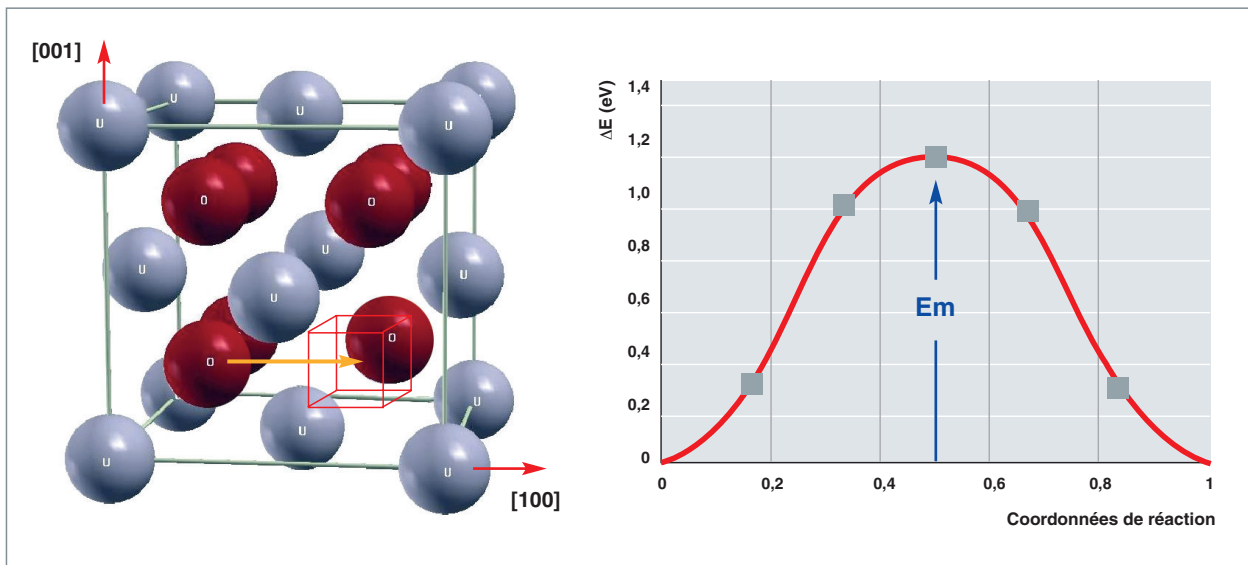


Fig. 32. À gauche, exemple de chemin de migration exploré pour l'étude des propriétés de transport de défauts oxygène : migration selon la direction cristallographique [100] d'une lacune d'oxygène.

À droite, barrière d'énergie ΔE à franchir calculée pour la migration du défaut selon cette direction : le maximum de la courbe correspond à l'énergie de migration E_m .

une trajectoire de migration pour le défaut : par exemple, la migration d'une lacune d'oxygène d'un site du cristal à un autre (fig. 32). L'énergie du système est alors calculée pour les positions successives du défaut le long de la trajectoire, en prenant en compte la distorsion de la structure induite par le défaut. La barrière d'énergie à franchir pour la migration peut ainsi être déterminée (fig. 32). Des chemins de migration selon différentes directions cristallographiques et selon des mécanismes différents (lacunaires, interstitiels) peuvent être explorés. Dans le cas des défauts d'oxygène dans UO_2 , les calculs *ab initio* montrent que c'est un mécanisme de migration de type interstitiel indirect qui présente la barrière de migration la plus basse (1,1 eV). Une telle approche peut être appliquée également à l'étude du transport atomique des produits de fission ou de l'hélium. Les énergies de migration calculées peuvent être reliées et comparées aux énergies d'activation de la diffusion, qui peuvent être mesurées expérimentalement.

mettent de déterminer le site préférentiel de l'élément incorporé et de quantifier sa solubilité grâce au modèle de défaut ponctuel (PDM) [9]. L'énergie de solution calculée prend en compte la concentration des sites sur lesquels le gaz peut se fixer (les lacunes), en fonction de la stœchiométrie de l'oxyde. Pour l'hélium, l'énergie de solution obtenue est faible (< 1 eV), quelle que soit la stœchiométrie, plaçant l'hélium à la limite de la solubilité dans l' UO_2 . La situation est plus tranchée pour le xénon, dont l'énergie de solution est de l'ordre de 6 eV dans l' UO_2 . L'incorporation d'atomes de xénon dans le réseau cristallin est donc très défavorable, en accord avec les observations expérimentales montrant la précipitation du xénon sous forme de bulles [10]. L'étape suivante de l'étude *ab initio* du comportement des gaz de fission est d'appréhender leurs mécanismes de diffusion en calculant leurs énergies de migration.

Produits de fission dans le dioxyde d'uranium

Le calcul *ab initio* permet aussi d'étudier le comportement de produits de fission et de l'hélium dans le combustible. Une étude dans l'approximation LDA avait déjà été réalisée au CEA pour l'hélium, le krypton, le césium, l'iode et le strontium [8]. L'incorporation des gaz rares hélium et xénon a aussi été étudiée dans l'approximation GGA [5]. L'énergie d'incorporation de l'hélium et du xénon est calculée pour différents sites dans le cristal : les sites de substitution oxygène ou uranium et le site interstitiel octaédrique. En pratique, ces éléments sont introduits dans une supercellule, de la même façon que les défauts ponctuels. Les énergies d'incorporation obtenues per-

L'indispensable couplage modélisation / expérimentation

Les études par le calcul *ab initio* de l' UO_2 constituent une des briques de la modélisation multi-échelle des effets de l'irradiation des combustibles nucléaires, domaine récent et de pointe au CEA. Des passerelles sont mises en place pour que les différentes techniques de modélisation, de l'échelle atomique jusqu'à l'échelle de la pastille, se complètent. C'est notamment déjà le cas entre les méthodes *ab initio* de dynamique moléculaire classique et les modèles cinétiques de diffusion. Ces liens doivent encore être élargis aux méthodes de modélisation Monte-Carlo cinétique (comme cela a été fait pour les métaux [11]) et de dynamique des dislocations. Par ailleurs, le CEA participe activement à l'amélioration des méthodes de

calcul *ab initio*, et l'augmentation des performances de calcul permet de considérer des systèmes toujours plus complexes. Une description de plus en plus fine des propriétés physico-chimiques des composés d'actinides est alors possible, ainsi qu'une modélisation de plus en plus réaliste du comportement des combustibles sous irradiation. La démarche commence à être appliquée au CEA à des combustibles tels que ceux des réacteurs du futur (carbure ou nitrure d'uranium et de plutonium). Les progrès dans la modélisation doivent cependant s'accompagner d'avancées dans les méthodes expérimentales. Le couplage modélisation / expérimentation est, en effet, indispensable pour, d'une part, alimenter les modèles en grandeurs physiques expérimentales nécessaires à leur établissement, et, d'autre part, valider ces modèles *a posteriori*.

► Références

- [1] T. PETIT, C. LEMAIGNAN, F. JOLLET, B. BIGOT, A. PASTUREL, *Phil. Mag. B* **77**, 779 (1998).
- [2] N. RICHARD, S. BERNARD, F. JOLLET, M. TORRENT, *Phys. Rev. B* **66**, 235112 (2002).
- [3] J.-P. CROCOMBETTE, F. JOLLET, L.N. NGA, T. PETIT, *Phys. Rev. B* **64**, 104107 (2001).
- [4] M. FREYSS, T. PETIT, J.P. CROCOMBETTE, *J. Nucl. Mater.* **347**, 44 (2005).
- [5] M. FREYSS, N. VERGNET, T. PETIT, *J. Nucl. Mater.* **352**, 144 (2006).
- [6] B. T. M. Willis, *Proc. Br. Ceram. Soc.* **1**, 9 (1964).
- [7] A. D. MURRAY, B.T.M. Willis, *J. Solid State Chem.* **84**, 52 (1990).
- [8] J.-P. CROCOMBETTE, *J. Nucl. Mater.*, **305**, 29 (2002).
- [9] H. J. MATZKE, *J. Chem. Soc. Faraday Trans. II* **83**, 1121 (1987).
- [10] P. GARCIA, P. MARTIN, G. CARLOT, E. CASTELIER, M. RIPERT, C. SABATHIER, C. VALOT *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **352**, 136 (2005).
- [11] C-C. FU, J. DALLA TORRE, F. WILLAIME, J-L. BOCQUET, A. BARBU, *Nature Materials* **4**, 68 (2005).

Michel FREYSS et Carole VALOT,

Département d'études des combustibles

Les matériaux de gaine et d'assemblage

Pourquoi une gaine ?

Dans un réacteur à eau, le combustible sous forme d'oxyde ne peut pas être mis directement au contact de l'eau du circuit primaire car il est nécessaire d'assurer un confinement des produits de fission, qui seraient directement relâchés dans l'eau du circuit primaire en l'absence d'une gaine, à laquelle on assigne le rôle de première barrière. Par ailleurs, les caractéristiques mécaniques de l'oxyde ne permettraient pas le maintien d'une géométrie contrôlée de la matière fissile.

Fonctionnellement, la gaine doit donc participer au maintien de la géométrie du combustible dans le cœur et assurer le confinement dudit combustible et des produits de fission formés en son sein. On attend également d'elle une bonne capacité à évacuer la chaleur produite dans le crayon.

D'un point de vue plus opérationnel, on demande donc à la gaine une bonne transparence aux neutrons, une bonne conductivité thermique, une bonne résistance mécanique, même à haute température, une bonne étanchéité et une bonne résistance à la corrosion dans toutes les situations, y compris les situations accidentelles (jusqu'à la classe 4).

L'assemblage combustible obéit lui aussi à un cahier des charges bien précis. Fonctionnellement, il doit maintenir les crayons en place pour garantir la géométrie du cœur et assurer son bon fonctionnement neutronique et thermohydraulique. D'un point de vue opérationnel, on lui demande d'empêcher les crayons de vibrer sous l'effet de l'écoulement turbulent du fluide caloporteur primaire. Il doit assurer ce maintien « en souplesse » pendant tout le temps du séjour du combustible en réacteur, y compris en situation incidentelle et accidentelle, par exemple lors d'un séisme, ou lors d'un échauffement intempestif de l'élément combustible lié soit à une excursion de réactivité, soit à une perte de réfrigérant primaire.

Dans les réacteurs nucléaires de puissance à eau, le gainage des combustibles, mais également les éléments de structure de l'assemblage combustible (tube-guides et grilles, fig. 33), sont réalisés en alliages de zirconium. Les raisons principales qui ont conduit à ce choix résident dans la conjonction de plusieurs propriétés essentielles : une très faible absorption de neutrons thermiques, des propriétés mécaniques satisfaisantes, une bonne stabilité de celles-ci sous flux de neutrons et, enfin, une très bonne résistance à la corrosion par l'eau à haute température.

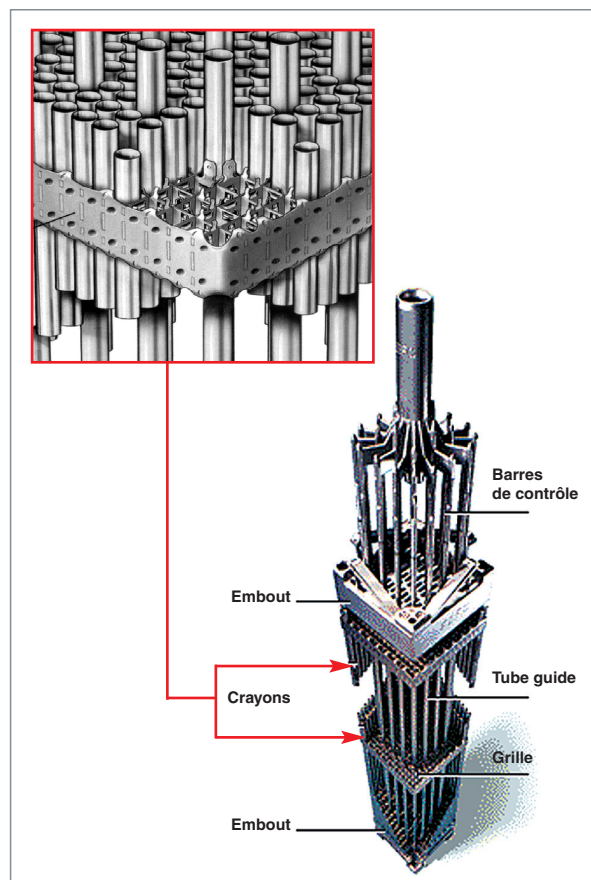


Fig. 33. Assemblage combustible des réacteurs à eau sous pression (REP).

Ces deux dernières propriétés sont déterminantes ; en effet, d'autres métaux possèdent aussi une faible **section efficace*** de **capture*** des neutrons thermiques (en particulier, le magnésium ou l'aluminium utilisés pour le gainage dans les réacteurs de recherche), mais leur résistance à la corrosion en présence d'eau se dégrade, dès que la température s'élève. Ils ne peuvent donc être utilisés pour des réacteurs où le rendement thermique impose une température moyenne élevée, de l'ordre de 350 °C.

Le développement industriel du Zr autour des années 60 est associé à la décision de l'amiral Rickover, en 1949, d'utiliser les alliages de zirconium dans le cadre du projet de sous-marins nucléaires. Le choix était motivé par le meilleur rendement neutronique par rapport au gainage en acier inoxydable. C'est seulement par la suite que le programme « *Atoms for Peace* » conduisit au développement des réacteurs de puis-

sance dérivés des projets militaires et donc à une optimisation économique des alliages utilisés [1].

Les alliages de zirconium

Le zirconium pur possède deux structures cristallographiques : au dessous de 865 °C, la structure alpha, hexagonale compacte, est thermodynamiquement stable. Au-dessus de cette température, c'est la structure bêta, cubique centrée, qui l'est. Dans la phase bêta, tous les additifs d'alliages sont solubles, alors que les métaux de transition (Fe, Cr, Ni) sont pratiquement insolubles dans la phase alpha et forment des précipités intermétalliques dont la distribution de taille influe sur la résistance à la corrosion de l'alliage.

L'addition d'étain améliore la résistance mécanique, en particulier la résistance au fluage, mais il détériore la tenue à la corrosion généralisée ; l'oxygène durcit l'alliage ; le niobium et les métaux de transition apportent une amélioration de la résistance à la corrosion.

Des gaines qui doivent avoir une bonne résistance mécanique

La gaine est sous contrainte sous les effets conjugués de la pression extérieure du circuit primaire (environ 15 MPa dans un REP), du gonflement de la pastille, des dilatations différentielles pastille-gaine lors des variations de puissance et du relâchement des gaz de fission.

Aujourd'hui, l'évolution des propriétés mécanique des alliages de Zr en présence d'irradiation neutronique reste un domaine d'étude très actif au CEA, en partenariat avec EDF et Areva NP. Les études concernent aussi bien le comportement en service que la nouvelle problématique de l'entreposage des combustibles usés. Pour illustrer ce point particulier, nous allons préciser les derniers résultats obtenus dans ce domaine qui a notamment fait l'objet d'une thèse au CEA [3], en se focalisant sur le comportement en écrouissage d'alliages de Zr irradiés.

Le comportement mécanique des alliages de Zr irradiés

Conséquence de l'irradiation, l'augmentation de la concentration en défauts, principalement les boucles <a> se localisant dans les plans prismatiques {1010} et {1120} (fig. 34), se traduit par un durcissement important :

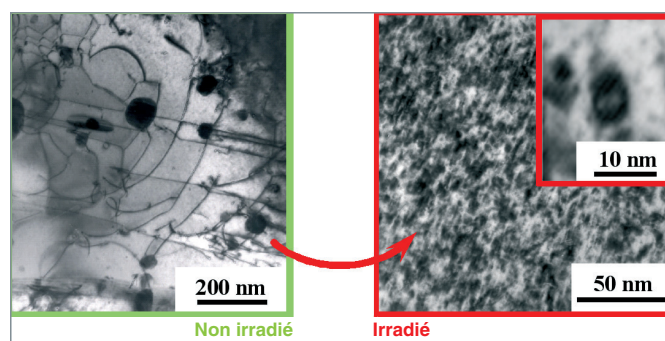


Fig. 34. Images en microscopie électronique d'un alliage de zirconium avant et après irradiation.

Ainsi, quelle que soit la nature de l'alliage (composition chimique) ou l'état métallurgique, on observe une augmentation continue de la limite d'élasticité atteignant un niveau de saturation situé vers 600 MPa pour une dose de l'ordre de 1.10^{25} n/m², dose à partir de laquelle il y a saturation des effets d'irradiation [2].

La figure 35 illustre cette évolution des propriétés mécaniques avec l'irradiation.

Conjointement, la **ductilité*** des alliages de Zr décroît continuellement de sa valeur d'origine (plusieurs %) jusqu'à moins de 1 % pour la même dose d'irradiation. L'évolution de cet allongement uniforme avec l'irradiation peut s'expliquer en tenant compte de la microstructure particulière du matériau irradié : les boucles d'irradiation, qui sont des obstacles au glissement des dislocations [3], peuvent être annihilées ou balayées pour une contrainte appliquée suffisante, donnant ainsi lieu à la

Composition (en % poids) des principaux alliages de zirconium utilisés dans les réacteurs à eau légère

Composition (en % poids) des principaux alliages de zirconium utilisés dans les réacteurs à eau légère				
Nom de l'alliage				
Composant de l'alliage	Zircaloy-2	Zircaloy-4	Zr 1-Nb, ou M5®	Zr 2.5-Nb
Sn	1.2-1.7	1.2-1.7		
Fe	0.07-0.2	0.18-0.24		
Cr	0.05-0.15	0.07-0.13		
Ni	0.03-0.08			
Nb			1	2.5
O		1 100 à 1 400 ppm		

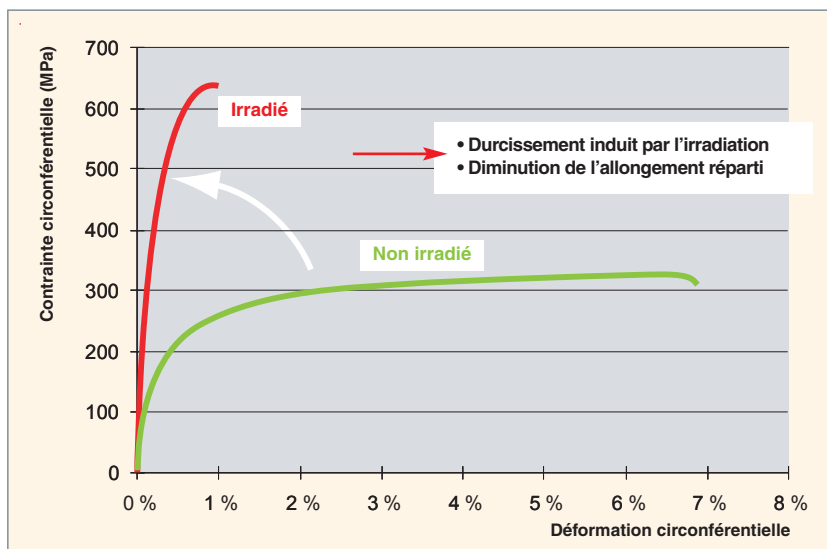


Fig. 35. Évolution du comportement mécanique en écouissage à 350 °C (essai d'éclatement) d'un alliage de Zr avant/après irradiation (10^{25} n/m²).

création d'une bande sans défaut d'irradiation, zone préférentielle pour le glissement des dislocations suivantes. C'est le mécanisme de canalisation des dislocations.

Une fois créées, ces zones exemptes de défauts (les canaux) conduiront à une déformation très localisée et donc à une déformation uniforme très faible [4], comme nous pouvons le voir figure 36.

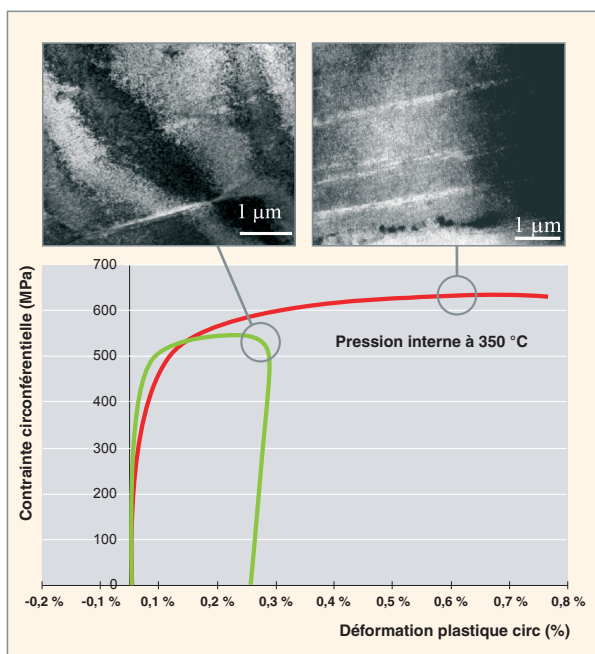


Fig. 36. Canalisation observée au cours d'essais d'éclatement à deux niveaux de déformation.

À partir de cette analyse fine de la microstructure en microscopie électronique en transmission, ainsi que de l'étude du comportement macroscopique basée sur des essais instrumentés de matériaux irradiés en faisant varier les directions de sollicitation (pression interne ou traction), il a été possible de proposer une modélisation micromécanique prédictive fondée sur les mécanismes de déformation identifiés.

La modélisation, basée sur les méthodes d'homogénéisation des matériaux hétérogènes, prenant explicitement en compte la texture ainsi que la nature cristalline du matériau (plan et direction de glissement) et la microstructure d'irradiation (boucles et canaux), a notamment permis de mettre en évidence le rôle majeur joué par les

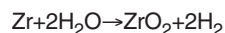
contraintes internes. En effet, celles-ci sont plus élevées dans le cas du matériau irradié que dans le cas du matériau non irradié, du fait du caractère très hétérogène de la déformation (forte localisation de la déformation dans les canaux).

L'extension de cette approche au cas du fluage et à terme aux déformations sous flux neutronique, notamment au fluage d'irradiation, est actuellement engagée au CEA.

Des gaines qui doivent résister à la corrosion

Un autre élément important est la résistance à la corrosion de la gaine. Température, état métallurgique, irradiation, chimie de l'eau : de nombreux facteurs influencent la cinétique de corrosion du Zircaloy.

L'agresseur est ici l'eau du circuit primaire, à une température de l'ordre de 300°C. Celle-ci oxyde le zirconium selon la réaction :



qui conduit à la formation d'un oxyde solide à la surface du métal. Une partie de l'hydrogène ainsi formé s'incorpore dans la matrice métallique, migre sous gradient thermique pour s'accumuler dans les zones les moins chaudes et y forme des hydrides susceptibles de fragiliser la gaine lors du refroidissement du combustible. Les deux phénomènes, oxydation et hydruration, sont donc intimement liés.

La croissance de la couche d'oxyde a lieu à l'interface oxyde-métal, et est due à la diffusion d'ions oxygène à travers la couche d'oxyde déjà formée, qui joue ainsi un rôle de barrière pour le développement de la corrosion. Cette propriété protectrice de la couche de zircone superficielle est toutefois limi-

tée par un changement du régime de corrosion qui est associé à une transformation de phase de la zircone quand la couche atteint une épaisseur de l'ordre de quelques μm [5]. La zircone peut exister sous deux formes cristallographiques : monoclinique et quadratique. Lors de la construction de la couche d'oxyde, la formation de l'oxyde induit des contraintes locales qui placent la couche sous contrainte de compression, ce qui stabilise la phase quadratique. Le film d'oxyde est alors dense et protecteur. Pour une épaisseur de couche supérieure à 2 à 3 μm , cette contrainte ne peut plus être maintenue : la couche se fissure et la zircone superficielle se transforme en une structure monoclinique poreuse. Après cette transition, la couche d'oxyde consiste en une couche interne dense et protectrice, de structure quadratique et monoclinique, surmontée d'une couche essentiellement monoclinique poreuse.

Dans la première phase de l'oxydation (avant la transition cinétique), l'épaisseur d'oxyde en fonction du temps obéit à une loi du type $\varepsilon_1 = \varepsilon_{1,0} \cdot t^{1/n} \cdot \exp(-\Delta H_1 / RT)$ avec n compris entre 2 et 3 selon la nature de l'alliage ;

Dans la seconde phase, dont l'importance est dominante en pratique, la loi a été assimilée en première approximation à une loi linéaire du type $\varepsilon_2 = \varepsilon_{2,0} \cdot t \cdot \exp(-\Delta H_2 / RT)$. Des examens poussés de la microstructure de l'oxyde et de la cinétique d'oxydation montrent, en fait, que celle-ci consiste en une succession de cycles semblables à celui caractérisant la première phase.

Dans les conditions des réacteurs à eau, la vitesse de croissance de la couche d'oxyde est de l'ordre de 5 à 20 $\mu\text{m}/\text{an}$ pour les Zircaloy standard et beaucoup moins pour les nouveaux alliages à base de niobium comme l'alliage M5[®] développé par AREVA NP (fig. 39). L'énergie d'activation ΔH_2 vaut 120 à 140 $\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$. La valeur particulièrement élevée de cette énergie d'activation entraîne un doublement de la vitesse de corrosion pour une augmentation de la température de 20 °C seulement, ce qui rend indispensable une compréhension fine des mécanismes, si on veut s'assurer la maîtrise de la corrosion.

En particulier, la croissance de la couche d'oxyde lors du séjour de la gaine en réacteur interpose une barrière thermique de plus en plus épaisse entre le combustible et le caloporteur, d'où une augmentation de la température à l'interface métal-oxyde qui contribue à l'accélération de la cinétique d'oxydation en réacteur, au-delà de $\sim 20 \mu\text{m}$ d'oxyde (fig. 37). À titre d'exemple, pour une puissance linéique de 20 $\text{kW} \cdot \text{m}^{-1}$ et une épaisseur d'oxyde de 40 μm , la température à l'interface métal-oxyde est supérieure de 20 °C à celle du caloporteur, et la vitesse de corrosion augmente d'un facteur 2 par rapport à celle d'un crayon neuf. L'emballement du phénomène de corrosion (oxydation et hydruration) pour les températures élevées interdit de tolérer une épaisseur d'oxyde supérieure à une centaine de μm . De plus, au-delà de cette valeur, l'oxyde desquame, ce qui conduit à la libération de particules d'oxyde dans le circuit primaire et à la formation de points froids au

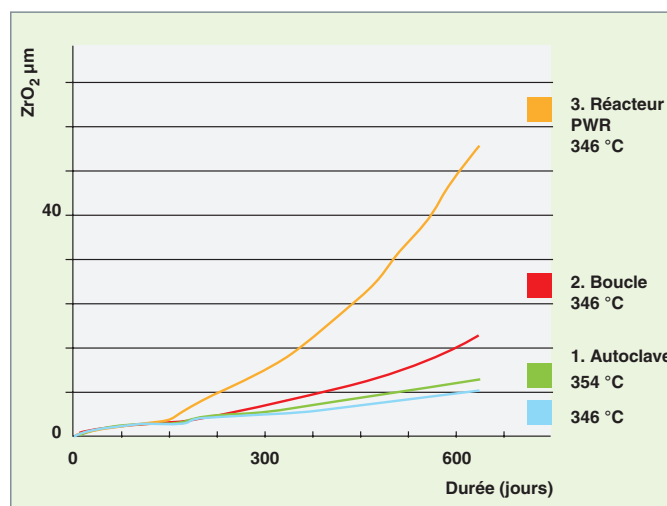


Fig. 37. Épaisseur de zircone formée en fonction du temps, déduite d'essais effectués au CEA pour du Zircaloy oxydé sous différentes conditions de corrosion : 1 en autoclave (sans gradient thermique, avec 2 températures différentes) ; 2 en boucle (avec chauffage électrique de l'intérieur de la gaine pour simuler le flux de chaleur) ; 3 en réacteur (avec flux de chaleur et sous irradiation). L'influence des différents facteurs d'accélération de la corrosion apparaît clairement.

niveau du métal sous-jacent affectant ainsi la précipitation des hydrures et accélérant la fragilisation locale du crayon combustible.

Outre la température, d'autres paramètres environnementaux peuvent accélérer significativement la cinétique d'oxydation des alliages de Zr (fig. 37). Il s'agit, en particulier, de l'irradiation, de la thermohydraulique (taux de vide, débit de vaporisation, flux de chaleur) et de la chimie de l'eau primaire (teneur en Li et B). Celle-ci est étroitement contrôlée, à la fois pour maîtriser le comportement neutronique du réacteur et pour maîtriser la corrosion des gaines et des structures. L'addition d'acide borique, absorbant neutronique, dans le circuit primaire entraîne un abaissement du pH, compensé par l'addition de LiOH qui accélère la corrosion. L'effet de la radiolyse* est contrebalancé par l'addition de H₂, qui catalyse la recombinaison de radicaux libres.

Ces points sont développés dans la monographie DEN M3 consacrée à la corrosion (à paraître).

Les éléments d'alliage (Fe, Cr) forment des phases secondaires (ZrCr₂) ordonnées qui se retrouvent incorporées dans la zircone lors de la formation de la couche d'oxyde (fig. 38). Ces phases, qui sont présentes à l'état non oxydées dans la couche de zircone interne dense, limitent la cinétique d'oxydation, probablement via un mécanisme de protection anodique de la matrice.

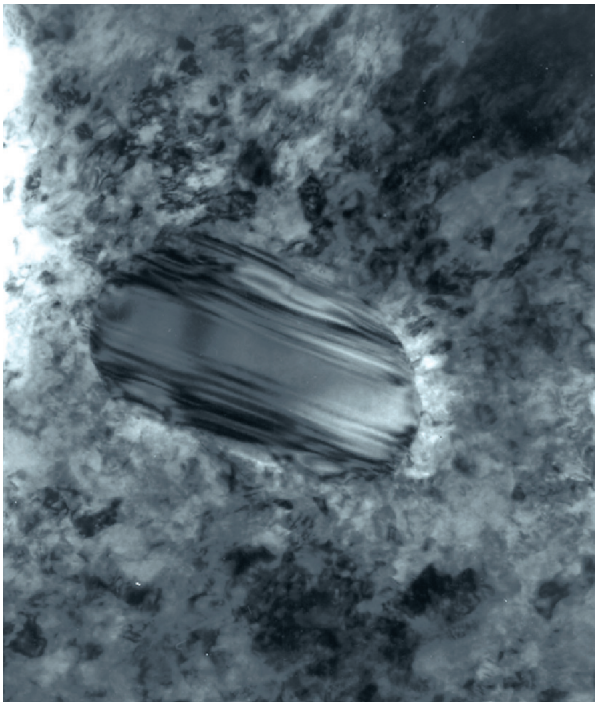


Fig. 38. Précipité intermétallique $Zr(Fe, Cr)_2$ observé au microscope électronique à transmission dans la couche d'oxyde interne dense (référence [7]).

L'amélioration apportée par l'additif niobium obéit à un mécanisme probablement différent : dans le cas des alliages Zr-Nb et dans certaines conditions, une ségrégation de niobium à l'état Nb^{5+} est observée à l'interface zircone/milieu oxydant, sur une épaisseur de quelques nanomètres. Cette couche ségrégée pourrait limiter la corrosion en agissant sur la cinétique de dissociation de la molécule d'eau sur la face externe de la couche d'oxyde.

Au total, le nouvel alliage M5[®] montre une résistance à la corrosion considérablement améliorée par rapport aux versions antérieures du Zircaloy (fig. 39). Cette amélioration, obtenue sans sacrifier les qualités mécaniques de la gaine, permet d'envisager une température de fonctionnement plus élevée et un temps de séjour en réacteur plus long.

► Références

- [1] C. LEMAIGNAN, *Science des matériaux pour le nucléaire*, collection « Génie atomique », EDP Sciences, 2004.
- [2] D. L. DOUGLASS, *The metallurgy of zirconium*, *Atomic Energy Review supplement*, ed. International Atomic Energy Agency, 1971.
- [3] F. ONIMUS, *Approche expérimentale et modélisation micromécanique du comportement des alliages de zirconium irradiés*, thèse de doctorat ECP, décembre 2003.
- [4] C. RÉGNARD, B. VERHAEGHE, F. LEFEBVRE-JOUD, C. LEMAIGNAN, (2002), *Activated slip systems and localized straining of irradiated alloys in circumferential loadings*, *ASTM STP, zirconium in the nuclear industry*, 13th international symposium, Annecy.
- [5] P. BOSSIS, G. LEJÈVRE, P. BARBERIS, X. ILLIS ET F. LEFEBVRE, *Multiscale characterisation of the metal-oxide interface of Zr alloys*, *ASTM STP 1354* (2000) 918-945.
- [6] M. BOIDRON, *Séminaire SFEN, Forts taux de combustion*, 16-1-2002.
- [7] C. LEMAIGNAN, « *Corrosion in the Nuclear Power Industry* », dans *Corrosion*, 13^e volume des ASM Handbooks (2005).

Didier GILBON,

Département des matériaux pour le nucléaire

et Bernard BONIN,

Direction scientifique

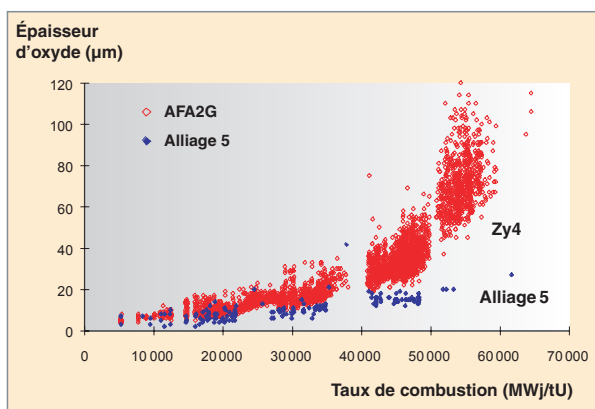
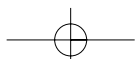
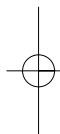
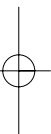


Fig. 39. Épaisseurs d'oxyde sur crayons Zy-4 avec combustible UO_2 [6]. On observe une accélération de la corrosion pour les taux de combustion élevés ou les temps de séjour longs. Le gain apporté par le nouvel alliage M5[®] apparaît clairement.



L'interaction pastille-gaine

Phénoménologie de l'interaction pastille-gaine (IPG)

En fonctionnement nominal, la température de la pastille est de l'ordre de 1 000 °C au centre et de 400 à 500 °C en périphérie. Sous l'effet de ce gradient thermique, la pastille se fragmente en secteurs et tronçons observables après retour à froid (fig. 40). Elle prend, de plus, une forme de diabolo qui s'imprime sur la gaine, après contact, sous forme de plis primaires, également observables après retour à froid, en raison de la déformation irréversible engendrée.

Le contact pastille gaine résulte, d'une part, de la réduction de diamètre de la gaine due à son fluage sous l'effet de la pression du caloporteur et, d'autre part, de l'accroissement de diamètre de la pastille dû à sa dilatation thermique et à son gonflement. En raison de l'effet diabolo, ce contact intervient d'abord au niveau des interpastilles. En parallèle, on assiste au réarrangement progressif des fragments de la pastille. Puis un état stationnaire s'établit : sous l'effet du gonflement de la pastille, la gaine est soumise à une contrainte de traction et accommode par **fluage*** sous irradiation la déformation diamétrale imposée. La contrainte circonférentielle d'équilibre dans la gaine est faible (< 100 MPa), au regard de sa résistance à rupture (> 600 MPa) et n'amène donc pas de risque d'endommagement.

En cas d'augmentation importante de la puissance, la température au cœur de la pastille s'accroît fortement (> 1 500 °C, voire > 2 000 °C, dans certains cas). L'effet diabolo est exacerbé et des produits de fission volatils agressifs pour la gaine, tels l'iode, sont relâchés, préférentiellement au niveau des fis-

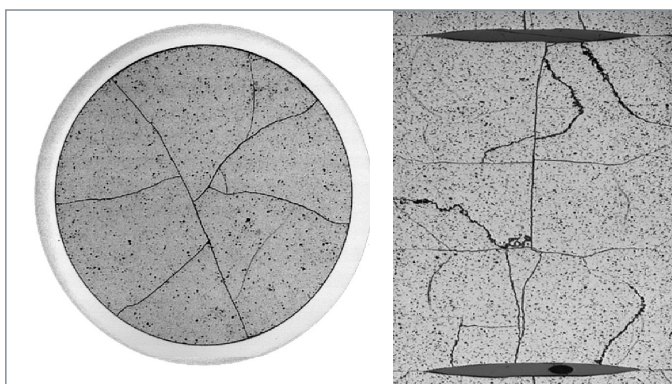


Fig. 40. Fissuration de la pastille UO₂ après 2 cycles REP annuels.

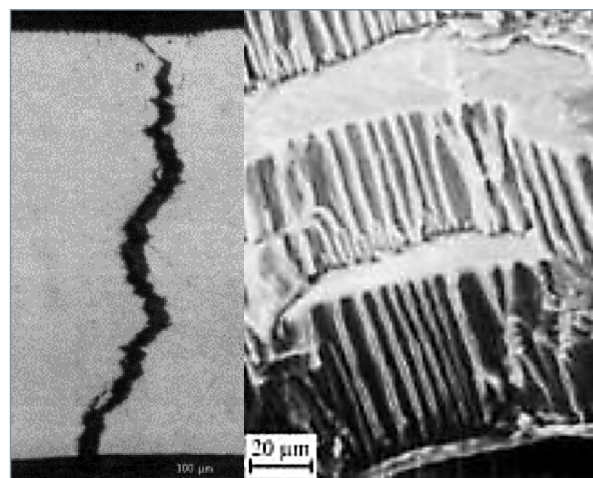


Fig. 41. Coupe transversale d'une fissure de gaine débouchante [1] et signature du faciès montrant les plans de quasi-clivage et les cannelures [2].

sures du combustible. Toutes les conditions sont ainsi potentiellement réunies pour amorcer un phénomène de corrosion sous contrainte (CSC) en peau interne de la gaine dans le plan interpastille, en regard d'une fissure radiale du combustible. Cette corrosion peut amorcer une fissure radiale et une rupture au faciès caractéristique (fig. 41).

Cette rupture s'observe, expérimentalement, après une à quelques minutes de maintien à puissance élevée. La fissure débouchante s'accompagne d'une faible déformation de gaine et s'avère difficile à visualiser en peau externe. Sa morphologie particulière conduit à la perte d'étanchéité du crayon vis-à-vis des produits de fission gazeux et volatils mais évite la dissémination de combustible dans le caloporteur.

L'augmentation de puissance engendre la dilatation thermique des pastilles, mais également d'autres phénomènes qui peuvent être bénéfiques :

- De la déformation viscoplastique se produit au centre des pastilles, à proximité de l'évidement, ce qui conduit à redresser les fragments radiaux, réduisant ainsi l'effet diabolo ;
- la relaxation partielle par fluage de la contrainte dans la gaine réduit l'accroissement de son chargement local ;
- la fissuration de la pastille évolue fortement au cours du transitoire : il se produit, dans la zone périphérique fragile, en

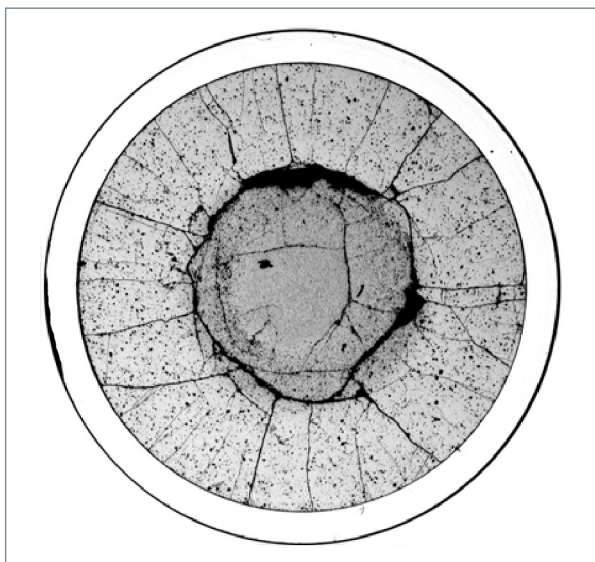


Fig. 42. Fissuration d'une pastille UO_2 ayant subi 2 cycles REP annuels puis 12 heures sous une puissance linéique de 430 W/cm.

traction à chaud, une fissuration additionnelle multiple (fig. 42), susceptible de contribuer à la réduction du dommage initié dans la gaine au lieu critique. La fissuration circumférentielle, quant à elle, se crée au retour à froid, séparant la zone fragile de la zone viscoplastique.

Enfin, un effet *a priori* néfaste intervient au cours du maintien en puissance, d'autant plus marqué que le niveau de puissance, le taux de combustion et le temps de maintien sont plus élevés : c'est le gonflement gazeux de la pastille.

En raison du risque de rupture de gaine lors d'un transitoire de puissance, cette interaction pastille-gaine (IPG) est donc un phénomène important dans la démarche de sûreté de l'élément combustible des réacteurs à eau (REP et REB) : l'intégrité de la gaine, première barrière de confinement des produits de fission, doit être garantie pour tous les transitoires d'exploitation (classe 1) et pour tous les transitoires incidentels (classe 2, probabilité d'occurrence $\geq 10^{-2}$ par réacteur et par an). Pour se prémunir contre ce risque, la démarche de sûreté consiste à limiter le domaine de fonctionnement autorisé des réacteurs, au niveau de la puissance maximale admissible (via des seuils de protection neutronique) et au niveau de la manœuvrabilité du cœur (notamment via des contraintes sur la cinétique des transitoires d'exploitation et sur la durée de fonctionnement à puissance intermédiaire). L'exploitant nucléaire est naturellement très intéressé par la réduction des contraintes d'exploitation de ses réacteurs.

La simulation expérimentale de l'IPG et ses enseignements. Nécessité d'une base expérimentale

Prévoir le maintien ou non de l'étanchéité de la gaine à l'issue d'un transitoire de puissance nécessite une modélisation précise du comportement thermo-mécanique de la pastille et de la gaine qui doit s'appuyer sur une solide base de données expérimentale. Les bases de données existantes sont principalement centrées sur des combustibles testés selon un protocole de transitoire de classe 2, baptisé « rampe de puissance ». Ce transitoire est appliqué à un crayon expérimental court, refabriqués à partir d'un crayon « père » irradié en réacteur de puissance.

Qu'est ce qu'une rampe de puissance ?

C'est l'application d'un transitoire de puissance, à partir d'une puissance de départ voisine de la puissance à la fin de l'irradiation de base, à vitesse de montée en puissance constante (généralement $100 \text{ W.cm}^{-1}.\text{min}^{-1}$) jusqu'à atteindre un palier prédéfini. Ce palier haut est maintenu jusqu'à rupture du crayon expérimental, ou 12 heures au maximum, en cas de non-rupture. Les expériences sont effectuées en boucle à eau pressurisée, par exemple dans le réacteur expérimental OSIRIS de Saclay [3].

L'objectif premier des essais de rampes de puissance est de définir, pour une conception donnée de crayons, la « limite technologique », dont le non-dépassement permet de garantir l'étanchéité de la gaine. D'autres expériences, notamment des rampes sans temps de maintien, ont aussi été réalisées dans un objectif de compréhension, en particulier pour renseigner sur l'état du combustible et de la gaine à l'instant où le chargement est le plus critique [4].

Caractéristiques du transitoire : rôle de la puissance locale

Les résultats obtenus font apparaître le niveau de puissance maximal atteint en fin de montée comme un paramètre majeur. On peut ainsi définir, pour un concept de crayon donné dans une gamme d'épuisement donnée, un niveau de puissance seuil en-deçà duquel la gaine reste étanche et au-delà duquel le risque de rupture augmente sensiblement quand la puissance croît. Ce seuil en puissance est établi autour de 420-430 W/cm pour un crayon UO_2 gainé en Zircaloy-4 et pré-irradié 2 cycles annuels en REP. À titre de comparaison, la puissance nominale moyenne du crayon REP est de l'ordre de 180 W/cm et la puissance maximale à ne pas dépasser pour respecter le critère de non fusion à cœur du combustible est de 590 W/cm.

Caractéristiques de l'état initial du crayon : influence du taux de combustion*

Toujours pour ces mêmes crayons $UO_2/Zy4$, le risque IPG apparaît maximal dès la phase de contact fort pastille gaine, typiquement après deux cycles (# 25-30 GWj/tU). L'augmentation ultérieure du taux de combustion est plutôt bénéfique : en particulier, la formation du « RIM », zone très poreuse à petits grains en périphérie de pastille, diminue la rigidité du combustible au contact de la gaine et réduit le risque de poinçonnement. Ces effets bénéfiques l'emportent sur d'autres effets du taux de combustion, *a priori* néfastes comme l'accroissement global de déformation de la pastille dû au gonflement gaz, ou la réduction de la plasticité de la gaine. De plus, à fort taux de combustion, l'occurrence d'un transitoire à puissance élevée devient improbable, en raison de l'épuisement croissant du combustible.

Matériau de gaine : du Zy-4 au M5®

La nature du matériau de gainage influe également sur le risque de rupture de gaine. L'alliage M5® (recristallisé), développé pour son excellente résistance à la corrosion aqueuse, présente des propriétés mécaniques modifiées par rapport au Zy-4 (détendu), notamment une plus grande résistance au fluage sous irradiation à basse contrainte et une plus grande capacité de relaxation à forte contrainte. Il en résulte un accroissement du taux de combustion où le risque IPG est maximal et une légère augmentation du niveau de puissance seuil de rupture (~ + 20 W/cm).

Bénéfice MOX et combustible dopé

Des combustibles particuliers ont pu subir, sans rupture de gaine, des rampes jusqu'à des puissances très supérieures à la valeur seuil de l' UO_2 standard (# 420 W/cm).

- Des crayons MOX (oxyde mixte $[U,Pu]O_2$), pré-irradiés deux à trois cycles annuels en REP, ont été testés avec succès jusqu'à des niveaux voisins de 500 W/cm.
- Un combustible UO_2 à gros grains, obtenu par dopage à l'oxyde de chrome, a été rampé à 535 W/cm sans rupture.

Ces combustibles sont caractérisés par une viscoplasticité à haute température plus grande que celle de l' UO_2 , et une fissuration plus dense en périphérie de la pastille liée à une plus grande fragilité dans la zone froide.

La simulation numérique de l'IPG

La modélisation de l'IPG a débuté au CEA avec le code MÉTÉOR, basé sur une formulation 1D axisymétrique [5] qui réalise un couplage de chacun des phénomènes mis en jeu, fournit une estimation des évolutions géométriques moyennes,

et évalue le comportement des produits de fission et les modifications microstructurales associées.

Une description détaillée des conditions de chargement local en IPG nécessite cependant une représentation 3D de l'élément combustible. À cette fin, l'application combustible 3D TOUTATIS [6] a été développée à partir du code élément fini CAST3M du CEA. Plus récemment, une application multi-D, ALCYONE [7], a été développée dans le cadre de la plateforme combustible PLÉIADES [8] pour permettre d'intégrer l'ensemble des modélisations avancées mises au point dans les codes MÉTÉOR et TOUTATIS.

Schéma de couplage multiphysique

Les principaux phénomènes à prendre en compte pour la simulation du comportement des combustibles sont résumés sur la figure 43.

Ces phénomènes peuvent être séparés en deux catégories : d'une part, la physico-chimie, qui traite le comportement des produits de fission et les modifications du matériau à une échelle allant du nanomètre à la centaine de micromètres, et, d'autre part, la thermo-mécanique, qui évalue les modifications géométriques à l'échelle du crayon combustible. Le couplage multiphysique entre les phénomènes se fait par une boucle de convergence qui enchaîne les problèmes thermique, mécanique et physico-chimique couplés à partir de 4 variables internes principales : déplacements, température, contraintes et déformations associées.

La loi de comportement mécanique de la pastille prend en compte les différents mécanismes de déformation et de fluage, couplés au développement de la fissuration dans les zones en traction [9]. Le comportement visco-plastique de la gaine sous irradiation prend en compte, pour les différentes nuances de matériau, la plasticité, le fluage et les effets d'irradiation : notamment l'accroissement de la vitesse de fluage par le flux de neutrons rapides, le durcissement lié aux modifications microstructurales et la croissance axiale, ainsi que l'anisotropie du comportement inélastique.

Les principaux phénomènes physico-chimiques retenus pour la simulation 3D de l'IPG sont la densification, le gonflement solide et le gonflement gazeux en régime transitoire qui, dans ALCYONE, est directement couplé au comportement mécanique.

Dans le modèle élément fini 3D (fig. 46), on représente seulement le quart d'un fragment de pastille localisé à la cote axiale du plan de puissance maximale appliquée pendant la rampe. Les conditions aux limites prennent en compte les symétries liées à la géométrie du fragment, ainsi que les interactions pastille-gaine et fragment-fragment.

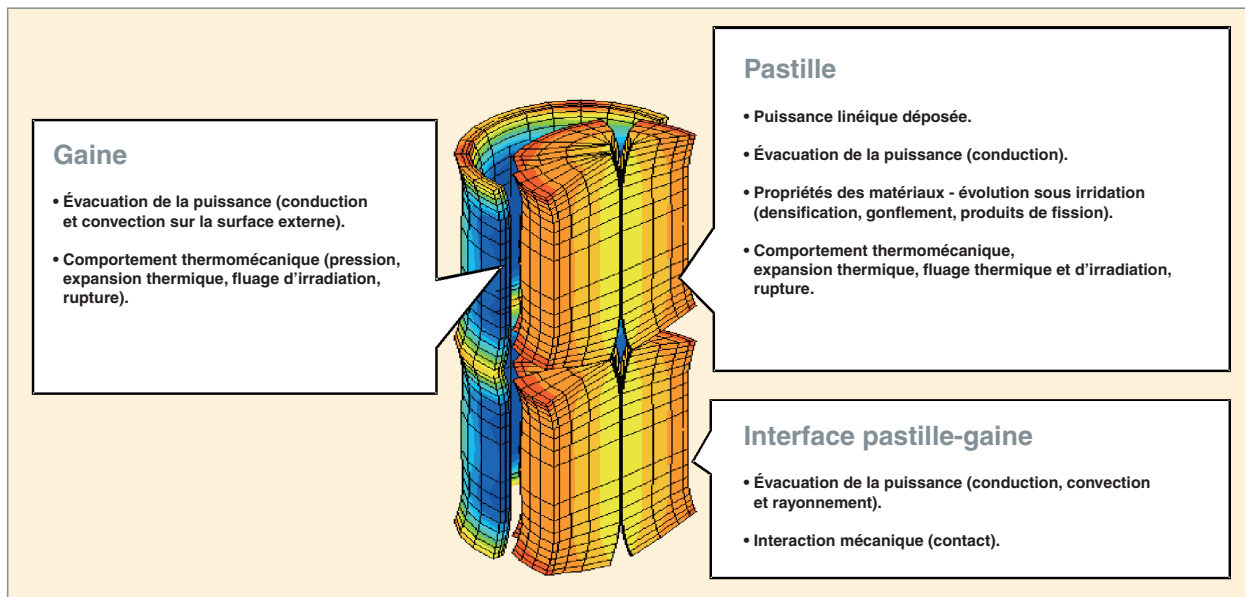


Fig. 43. Modélisation thermo-mécanique du combustible REP.

Calcul de la profilométrie extérieure gaine avant et après rampe

La validation des résultats de simulation à partir de la profilométrie de la gaine permet de s'assurer de la capacité de la modélisation à reproduire les mécanismes d'interaction pastille-gaine qui conduisent à des déformations résiduelles significatives après irradiation :

- En irradiation de base, on retrouve bien par le calcul les différents phénomènes amenant à la mise en diabolo des pastilles et à la formation des plis primaires sur la gaine ;
- pendant la rampe, sous les effets combinés du chargement thermique et du gonflement gazeux, on calcule un accroissement des déformations viscoplastiques au centre de la pastille, qui comblent l'évidement et relaxent le déplacement radial du fragment au plan inter-pastille, et, par ailleurs, contribuent à un accroissement du diamètre au plan médian-pastille, d'où les plis secondaires observés sur les profilométries après rampe.

La comparaison calcul mesure (fig. 44) montre la capacité de la simulation 3D à prédire la hauteur des plis et la variation de diamètre pendant la rampe. Cette bonne estimation de la variation de diamètre fait partie des améliorations apportées par la prise en compte du couplage avec le gonflement gazeux dans le calcul 3D.

Fissuration évolutive du fragment de pastille, lors de l'irradiation

Les développements récents des calculs 3D permettent aujourd'hui de calculer, en cohérence avec les observations expérimentales, l'apparition et l'évolution (ouverture et fermeture) des fissures axiales, radiales et circonférentielles qui apparaissent sur différents plans de la pastille, au cours des montées et baisses de puissance, ce qui permet d'améliorer le calcul des efforts transmis à l'interface pastille-gaine.

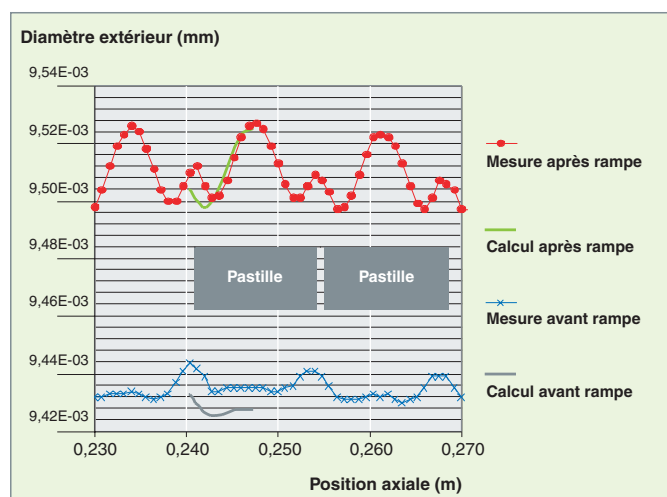


Fig. 44. Diamètres externes gaines calculés et mesurés avant et après une rampe.

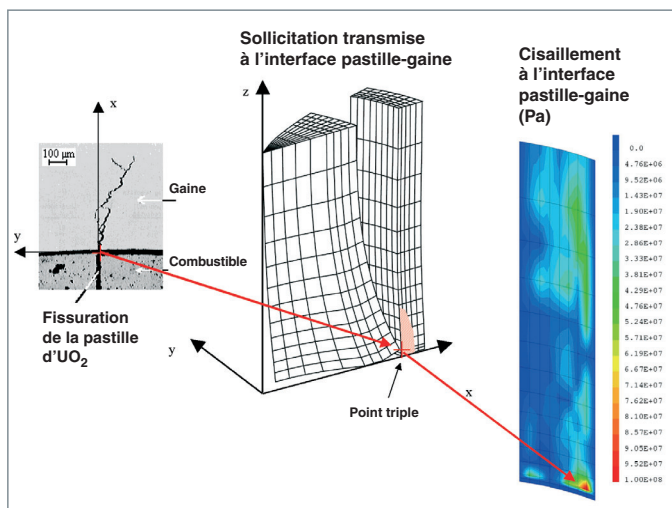


Fig. 45. Localisation de la contrainte de cisaillement à la fin du transitoire de rampe.

Localisation de la rupture lors de l'IPG

Les progrès de la simulation 3D permettent d'expliquer l'origine de la localisation typique des ruptures IPG : le maximum de cisaillement imposé par la pastille à la gaine est atteint au niveau du point triple où se produit la rupture (fig. 45). Cette localisation particulière s'explique par la concomitance des valeurs maximales de la pression de contact et de la discontinuité de déplacement à l'interface pastille gaine. Ces deux grandeurs mécaniques étant respectivement liées au poinçonnement de la gaine et à l'écartement périphérique des fragments de pastille.

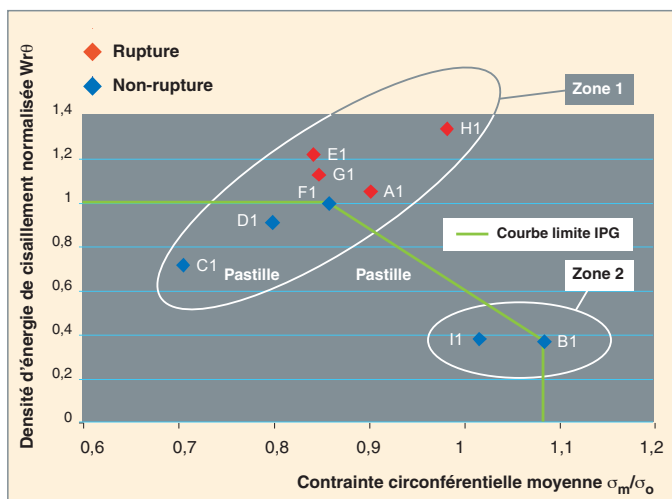


Fig. 46. Résultats de rampes comparés à un critère de rupture IPG à deux paramètres : énergie de cisaillement à l'interface pastille-gaine, et contrainte moyenne circonférentielle.

Effet du combustible sur le comportement en IPG

La simulation 3D montre également que la sollicitation de cisaillement transmise par l'interface est réduite lorsque le nombre de fissures en périphérie de pastille augmente, ce qui explique, en partie, le meilleur comportement en IPG des UO_2 dopés à l'oxyde de chrome. Un critère à deux paramètres a également été proposé. Ce critère décompose la sollicitation lors de l'IPG en deux aspects : une contrainte moyenne circonférentielle σ_m et un paramètre énergétique $Wr\theta$ correspondant au travail des forces de cisaillement à l'interface pastille gaine. L'utilisation d'un second paramètre lié au cisaillement de l'interface permet ainsi de rationaliser le classement des résultats expérimentaux obtenus sur les rampes de puissance pour les combustibles UO_2 standard et UO_2 dopé (fig. 46). On peut ainsi définir une courbe limite de rupture par IPG commune aux deux combustibles, cohérente avec la non-rupture des combustibles dopés à l'oxyde de chrome à plus forte puissance (zone 2 sur la figure 46).

Vers la suppression des contraintes d'exploitation liées à l'IPG

Face à l'obligation de sûreté de garantir la non-rupture de gaine par IPG/CSC, en cas de transitoire de puissance de classe 1 ou 2, la stratégie industrielle mise en place pour les REP français, fondée sur l'expérimentation et la modélisation, a fait la preuve de son efficacité. En effet, aucune fissuration de gaine par IPG n'a été constatée dans les REP français. Mais elle s'accompagne de consignes pénalisantes pour l'exploitation des cœurs.

Dans un objectif de réduction (voire, à terme, de suppression) des limitations IPG imposées au pilotage des réacteurs, un combustible remède dopé à l'oxyde de chrome a été étudié dans les laboratoires du CEA. Il reste à franchir l'étape de validation sur un produit de fabrication industrielle. Vu la multiplicité des cas à traiter et la complexité des phénomènes en jeu, l'apport de la capacité prédictive du schéma numérique 3D développé par le CEA sera déterminant, à côté de la constitution d'une base expérimentale robuste.

► Références

- [1] C. MOUGEL, B. VERHAEGHE, C. VERDEAU, S. LANSIART, S. BÉGUIN, B. JULIEN, *Power ramping in the OSIRIS reactor: data base analysis for standard UO_2 fuel with Zy-4 cladding*, International Seminar on Pellet-Clad Interaction in Water Reactor Fuels, 9-11 March 2004.
- [2] G.G. BOND *et al.*, *SGHWR fuel performance under power ramp conditions*, Journal of British Nuclear Energy Society **16** (1977) p. 225-235.
- [3] A. ALBERMAN *et al.*, *Technique for power ramp tests in the ISABELLE 1 loop of the OSIRIS reactor*, Nuclear Engineering and Design **168** (1997).

[4] C. NONON *et al.*, *Impact of fuel microstructure on PCI behaviour*, International Atomic Energy Agency Technical Meeting on improved fuel pellet materials and designs, 20-24 October 2003.

[5] P. GARCIA, C. STRUZIK, M. AGARD and V. LOUCHE, *Mono-dimensional mechanical modelling of fuel rods under normal and off-normal operating conditions*, Nuclear Engineering and Design, Volume 216, Issues 1-3, July 2002, Pages 183-201

[6] F. BENTEJAC, N. HOURDEQUIN, *TOUTATIS: an application of the CAST3M finite element code for PCI three-dimensional modelling*, International Seminar on Pellet-Clad Interaction in Water Reactor Fuels, Aix-en-Provence, 9-11 March 2004

[7] G. Thouvenin, J.-M. RICAUD, B. MICHEL, *ALCYONE: the PLEIADES fuel performance code dedicated to multidimensional PWR studies*, International Meeting on LWR Fuel Performance, Salamanca, Spain, 2006.

[8] D. PLANCO, *PLÉIADES: a unified environment for multi-dimensional fuel performance modelling*, International Meeting on LWR Fuel Performance, Florida, 2004.

[9] B. MICHEL, J. SERCOMBE *et al.* *3D fuel cracking modelling in pellet cladding mechanical interaction*, Eng Fract Mech (2007).

Sylvie LANSIART et Bruno MICHEL,
Département d'études des combustibles

Les céramiques UO_2 et MOX avancées

Dans un but de rentabilité économique, les exploitants nucléaires visent à augmenter le taux de combustion des combustibles UO_2 et MOX, avec des temps de séjour en réacteur allongés. Il est également demandé aux combustibles d'autoriser une conduite du réacteur souple, permettant d'adapter la puissance du réacteur aux besoins du réseau de distribution d'électricité, tout en gardant des marges de sûreté suffisantes. Une première étape a été franchie par le développement d'un matériau de gainage plus résistant à la corrosion : un alliage zirconium niobium (voir chapitre « Les matériaux de gaine et d'assemblage ») qui permet de franchir l'une des premières butées rencontrées dans l'accroissement des taux de combustion, à savoir la corrosion externe des gaines.

Ces objectifs amènent, en outre, à développer et qualifier de nouvelles microstructures de pastilles combustibles plus performantes, en particulier capables de réduire les contraintes mécaniques et les risques de rupture de gaine liés à l'interaction pastille-gaine, capables également d'une rétention accrue des gaz de fission, aussi bien en situation normale qu'en situation accidentelle. Pour satisfaire ces demandes, les recherches s'orientent vers des céramiques UO_2 ou MOX possédant une microstructure très contrôlée, notamment en ajoutant des dopants au moment du frittage.

Le combustible UO_2 dopé à l'oxyde de chrome

L'objectif prioritaire d'amélioration des performances du combustible UO_2 est d'améliorer la manoeuvrabilité des réacteurs, donc de disposer d'un combustible qui permette de réduire les contraintes d'exploitations imposées par le risque de rupture par IPG (voir chapitre « L'interaction pastille-gaine »). À cette fin, les recherches se sont orientées vers un matériau ayant des propriétés mécaniques améliorées par rapport à l' UO_2 standard, en particulier une vitesse de fluage plus élevée.

Un deuxième objectif est d'accroître la capacité de rétention des gaz de fission afin d'augmenter les taux de combustion

des crayons combustibles, tout en gardant des marges vis à vis de la pression interne. Dans ce but, on a cherché à obtenir des microstructures à gros grains, l'idée étant d'allonger le chemin que les gaz de fission ont à parcourir pour atteindre les joints de grains, première étape du parcours qui amène in fine au relâchement des gaz dans le **plenum***.

Des microstructures UO_2 à gros grains peuvent être obtenues soit par un frittage de très longue durée, ce qui est économiquement pénalisant, soit par frittage oxydant, ce qui nécessiterait des investissements substantiels et un cycle de frittage difficile à maîtriser. Une troisième méthode est d'utiliser des additifs de frittage, en particulier les oxydes trivalents comme Cr_2O_3 ou Al_2O_3 , avec utilisation ou non d'un deuxième additif SiO_2 , dans le but de former des phases visqueuses aux joints des grains.

Un programme important de R&D a été mené au CEA [1, 2, 3], en collaboration avec AREVA-NP et EDF, dans le but de :

- Mettre au point les conditions de fabrications permettant d'obtenir de gros grains, d'identifier et de comprendre les mécanismes responsables du grossissement granulaire, et d'optimiser les paramètres (notamment, teneurs en additif) : il est, en effet, nécessaire de maintenir le cation de l'additif à la valence 3, donc de fritter sous atmosphère d'hydrogène humidifié afin d'imposer le potentiel d'oxygène adéquat. Avec la même température (1 700 °C) et la même durée de frittage, il est ainsi possible d'obtenir des tailles de grains de 50 μm ou plus, à comparer aux tailles de grains standards d'environ 10 μm (voir fig. 47).

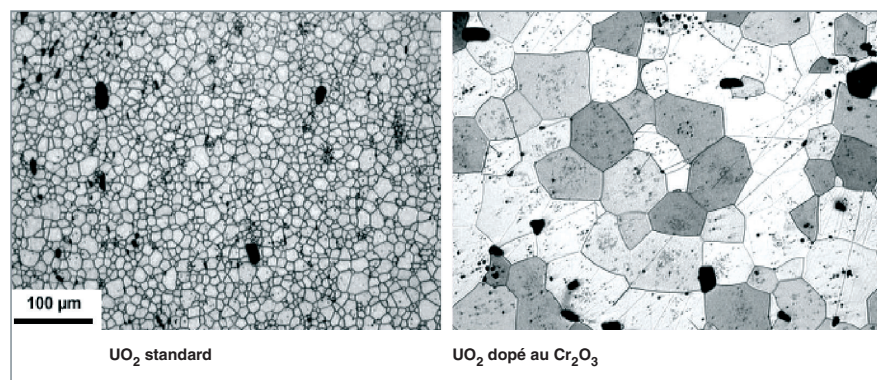


Fig. 47. Tailles des grains dans un UO_2 dopé à l'oxyde de chrome, comparée à celle dans un UO_2 standard.

- Caractériser les pastilles ainsi obtenues, et notamment déterminer leurs propriétés mécaniques (fluage et déformation plastique). Il a ainsi été mis en évidence une augmentation significative des vitesses de fluage des produits UO_2 dopés par rapport à celles de l' UO_2 standard (contrairement à ce qu'on aurait pu craindre d'un produit à gros grains, si le fluage diffusion avait constitué le mécanisme de fluage prépondérant dans le domaine températures-contraintes d'intérêt).
- Réaliser des premiers tests sous irradiation, en réacteur expérimental, des différentes microstructures obtenues et effectuer ainsi une première sélection en s'appuyant notamment sur un programme de recuits thermiques sur pastilles irradiées.
- Lancer des premières irradiations de crayons en REP avec de l' UO_2 dopé à l'oxyde de chrome (expériences CONCERTO). Ces crayons, examinés à différents taux de combustion, ont permis de réaliser, après deux cycles d'irradiation, les rampes de puissance qui ont démontré le gain important apporté par ces produits dopés sur la problématique IPG [4], puisqu'une rampe à 535 W/cm a pu être effectuée sans rupture, soit un gain d'environ 100 W/cm par rapport à l' UO_2 standard [5].

Le développement de ces produits dopés se poursuit actuellement avec l'irradiation d'assemblages complets en REP visant à qualifier le produit.

Les nouvelles microstructures de MOX

Le comportement des combustibles MOX se distingue de celui de l' UO_2 par un relâchement élevé des gaz de fission (voir chapitre « Le comportement des combustibles UO_2 et MOX en réacteur »). Ce relâchement plus élevé dans les MOX résulte d'un historique d'irradiation plus sévère que celui des crayons UO_2 (puissances linéiques plus élevées en fin d'irradiation) et d'une température à cœur plus forte (conductivité thermique un peu plus faible) ; mais la microstructure particulière du MOX élaboré par le procédé MIMAS (voir chapitre « Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau »), avec une taille des grains légèrement plus petite que celle de l' UO_2 et une répartition hétérogène de la matière fissile [6] peut également jouer un rôle, et cela a fait l'objet d'études approfondies au CEA : les amas riches en Pu sont le siège d'un taux de combustion très élevé qui entraîne une restructuration de l'oxyde mixte : subdivision des grains et précipitations de bulles de gaz qui se retrouvent alors en position intergranulaire, et donc immédiatement disponibles pour un relâchement lors d'un transitoire de puissance. En particulier, à l'issue des essais RIA, le relâchement des gaz de fission est plus élevé dans les MOX que dans les combustibles UO_2 .

Afin de regagner des marges, une R&D a été conduite au CEA en collaboration avec AREVA-NC, AREVA-NP et EDF, afin de développer de nouvelles microstructures de MOX à capacité de rétention accrue [7, 8]. Comme pour l' UO_2 , on vise à faire

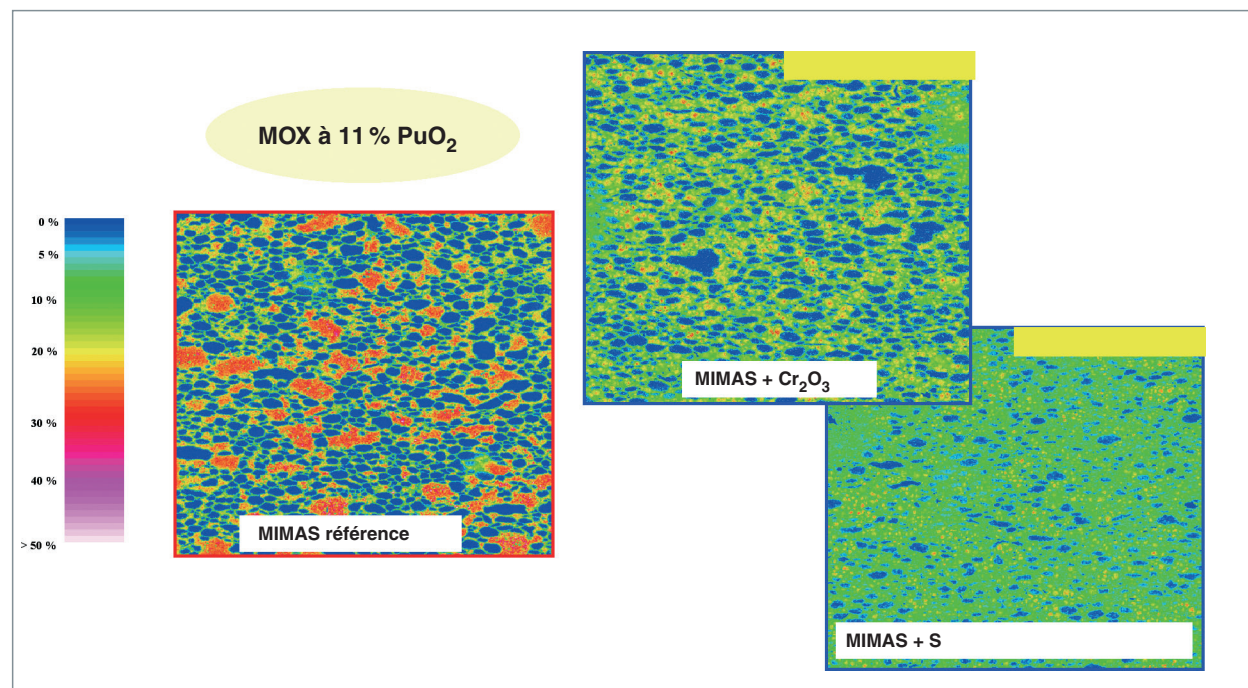


Fig. 48. Cartographies microsonde de combustible MOX MIMAS avec additifs oxyde de chrome et soufre comparées à un MOX standard.

croître la taille des grains, mais on cherche aussi à obtenir une meilleure homogénéité de répartition du plutonium tout en gardant le procédé de fabrication MIMAS sur lequel a été dimensionnée l'usine MELOX.

Les études ont notamment permis d'identifier et de comprendre le rôle des additifs de frittage oxyde de chrome et soufre sur la croissance granulaire et sur l'inter-diffusion de l'uranium et du plutonium pendant le frittage. Il a ainsi été montré que, grâce à ces additifs, on pouvait gagner un facteur 2 à 3 sur la taille des grains du combustible MOX ; il est cependant très difficile d'atteindre des valeurs aussi élevées de taille de grains que dans l' UO_2 : la formation de la phase solide (U,Pu) O_2 est un frein à la croissance granulaire. Ces résultats ont également montré que la présence du chrome ou du soufre permettait d'accélérer l'inter-diffusion de l'U et du Pu : on peut ainsi obtenir, avec le procédé MIMAS une répartition de la matière fissile presque homogène (voir fig. 48).

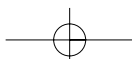
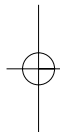
Le comportement sous irradiation de ces nouvelles microstructures de MOX est en cours d'études à l'aide d'irradiations en réacteur expérimental, notamment à Osiris, à Saclay. Des irradiations de crayons fabriqués dans les installations industrielles seront prochainement réalisées en réacteur de puissance. Il importera de vérifier que ces microstructures apportent bien le gain espéré et qu'elles n'ont pas de conséquences délétères sur d'autres aspects, en particulier la bonne tenue en interaction pastille-gaine du combustible MOX standard.

► Références

- [1] PH. DEHAUDT, L. CAILLOT, G. DELETTE, G. EMINET, A. MOCELLIN, *Irradiation of UO_{2+x} fuels in the TANOX device*, Technical Committee Meeting on Advances in Pellet Technology for Improved Performance at High Burnup (IAEA), Tokyo, Japan, 28 October-1 November 1996.
- [2] L. BOURGEOIS, PH. DEHAUDT, C. LEMAIGNAN, A. HAMMOU, *Factors governing microstructure development of Cr_2O_3 -doped UO_2 during sintering*, Journal of Nuclear Materials, 297 (2001) 313-326.
- [3] S. VALIN, L. CAILLOT, PH. DEHAUDT, Y. GUÉRIN, A. MOCELLIN, C. DELAFOY, A. CHOTARD, *Synthesis of the results obtained on the advanced UO_2 microstructures irradiated in the TANOX device*, IAEA Technical Committee Meeting on Improved Fuel Pellet Materials and Designs, Bruxelles, octobre 2003.
- [4] CH. DELAFOY, P. BLANPAIN, C. MAURY, PH. DEHAUDT, CH. NONON, S. VALIN, *Advanced UO_2 fuel with improved PCI resistance and fission gas retention capability*, TOPFUEL 2003, Würzburg, Germany, 16-19 March 2003.
- [5] C. NONON, J.C. MÉNARD, S. LANSIART, J. NOIROT, S. MARTIN, G.M. DECROIX, O. RABOUILLE, C. DELAFOIX, B. PETITPREZ, *PCI behaviour of chromium oxide doped fuel*, International Seminar on PCI in Water Reactor Fuels (9-11 March 2004).
- [6] G. OUDINET, I. MUNOZ-VIALLARD, M.J. GOTTA, J.M. BECKER, G. CHIARELLI, R. CASTELLI, *On the characterization of Pu distribution in MIMAS MOX by image analysis*, IAEA Technical Committee Meeting on Improved Fuel Pellet Materials and Designs, Bruxelles, octobre 2003.
- [7] P. BLANPAIN, L. BRUNEL, X. THIBAUT, M. TROTABAS. *MOX Fuel Performance in the French PWR's: Status and Developments*, Proceedings of the International Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Park City, USA, 10-13 avril 2000.
- [8] P. BLANPAIN, M. ARSLAN, J.C. BOUCHTER, X. THIBAUT, *Le MOX et ses évolutions futures*, Convention Combustibles SFEN, 13, 14 juin 2006.

Yannick GUÉRIN,

Département d'études des combustibles



Le comportement mécanique de l'assemblage combustible

L'assemblage combustible (ensemble constitué du squelette et des crayons, fig. 49) forme une structure mécanique soumise aux chargements hydrauliques complexes exercés par le fluide caloporteur (turbulence de l'écoulement, redistribution des écoulements en cœur), aux efforts exercés aux limites sur les pièces de maintien par les structures environnantes (internes de cuve, plaques supérieure et inférieure de cœur) et aux effets d'environnement (température, flux neutronique, chimie du circuit primaire) induisant une évolution en service de ses matériaux constitutifs. Les sollicitations résultant des situations de fonctionnement normales ou accidentelles (séisme, Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP), de la manutention ou de l'entreposage en piscine ne doivent, à aucun moment de la vie de l'assemblage, compromettre ses fonctions essentielles pour la sûreté du réacteur. On veille notamment à maintenir l'intégrité de la première barrière et la géométrie de la répartition de la matière fissile dans le cœur, la possibilité de refroidir les éléments combustibles, ainsi que la possibilité d'insérer les grappes.

Dans l'objectif d'augmenter la compétitivité du parc électronucléaire, les nouvelles gestions de combustible mises en place ou prévues tendent à augmenter les taux d'épuisement et le temps de séjour des assemblages en réacteur. L'évolution vers des temps de séjour en réacteur plus longs a des conséquences sur le comportement mécanique des structures d'assemblage, notamment du fait de l'évolution sous irradiation de ses différents constituants. Parallèlement, l'exigence de sûreté toujours accrue implique une amélioration de la maîtrise des situations pouvant conduire au percement du gainage, soit sous l'impact d'un corps migrant avec le fluide caloporteur, soit sous l'effet de l'usure accélérée de la gaine due au frottement répété du crayon vibrant contre un support (*fretting*). Il s'agit aussi de mieux appréhender les déformations de l'assemblage combustible susceptibles de ralentir la chute des **grappes de contrôle*** et de renforcer les dossiers de justification de la tenue mécanique en conditions accidentelles de l'assemblage (séisme, **APRP***).

Les études de conception mécanique de l'assemblage combustible REP sont du domaine du fabricant. Les études de R&D conduites au CEA sont proposées et mises en œuvre en soutien à la justification de la conception des assemblages. Elles s'appuient sur des protocoles expérimentaux en boucles d'essai, des expérimentations analytiques et des modélisations du comportement mécanique. Elles visent essentiellement à améliorer la robustesse des méthodologies de qualification et de conception ainsi qu'à instruire les questions liées aux incidents rencontrés sur le parc pour lesquels l'expertise du CEA est sollicitée.

De nombreuses ruptures de gainage initiées par le phénomène de **fretting*** sont apparues avec la mise en place de gestions « allongées », au début des années 2000 [1]. Aux États-Unis, les percements par fretting observés sur les REP représentaient ~25% des causes de défaillance au début des années 90 pour atteindre 90 % à la fin de cette décennie [2]. Un important effort de R&D a été entrepris pour remédier à ces problèmes et proposer des assemblages plus robustes.

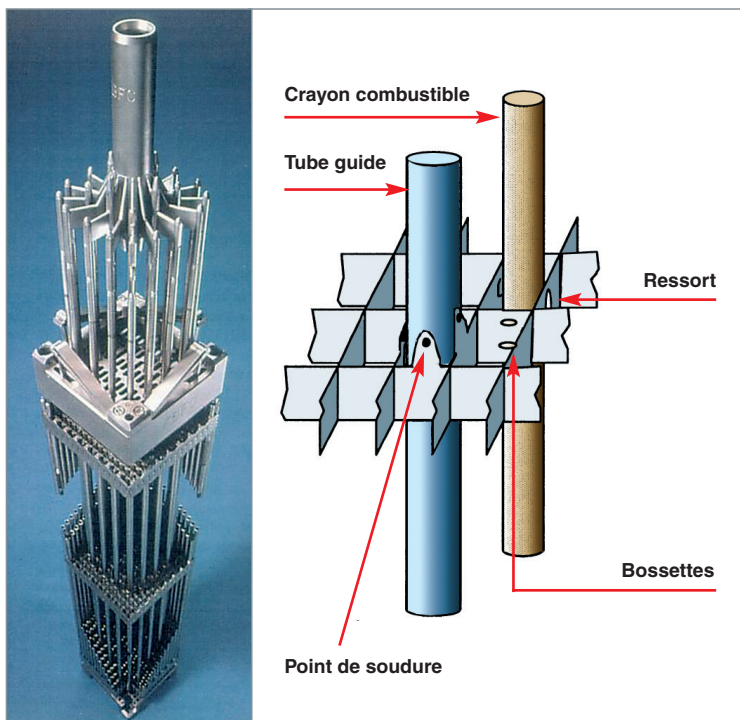


Fig. 49. Assemblage combustible + grappe de contrôle.
Schéma de principe d'une cellule de grille AFA.

Le comportement mécanique de l'assemblage en fonctionnement normal

Les structures d'assemblage en cœur sont soumises à diverses sollicitations : effort de compression exercé par les ressorts du système de maintien, efforts hydrodynamiques du fluide caloporteur sur l'assemblage ; irradiation qui induit un grandissement de l'assemblage et des crayons ainsi que la relaxation par fluage sous flux des structures contraintes... La maîtrise de ces efforts tout au long du cycle d'irradiation est importante, car un déficit de maintien axial conduit à l'« envol » de l'assemblage, tandis qu'un surcroît d'effort favorise une déformation latérale excessive des tubes-guides. Cette dernière situation produit des efforts de frottement supplémentaires sur la grappe, entraînant une dégradation de la cinétique de chute de la grappe de contrôle.

La R&D menée au CEA vise à améliorer l'évaluation *a priori* du comportement en réacteur de structures de conception nouvelle, ce qui nécessite :

- La modélisation des efforts hydrauliques en réacteur et des déformations de la structure associées. Cette modélisation

est validée par la détermination expérimentale des efforts hydrauliques axiaux et transversaux dans des boucles d'essai hors pile (fig. 50) ;

- la détermination des lois de fluage des matériaux constitutifs des composants (tube-guide, ressort du système de maintien et des grilles) par de nombreuses irradiations expérimentales réalisées dans le réacteur OSIRIS. Elles sont ensuite intégrées dans les modèles mécaniques prenant en compte les effets de l'irradiation sur les déformations ;
- l'évaluation expérimentale des caractéristiques des composants en conditions thermohydrauliques REP : relaxation sous écoulement des efforts de frottement du système de maintien, courbe d'hystérésis du système de maintien, pertes de charge des grilles et embouts (fig. 51) ;
- la connaissance des conséquences de déformations d'ensemble observées en réacteur sur la cinétique de chute de grappe dans des installations simulant la ligne de commande REP à échelle 1 intégrant : plaques de cœur, assemblage combustible, guide de grappe, grappe de contrôle, gaine de tige et mécanisme de commande de grappe (fig. 52) [3].

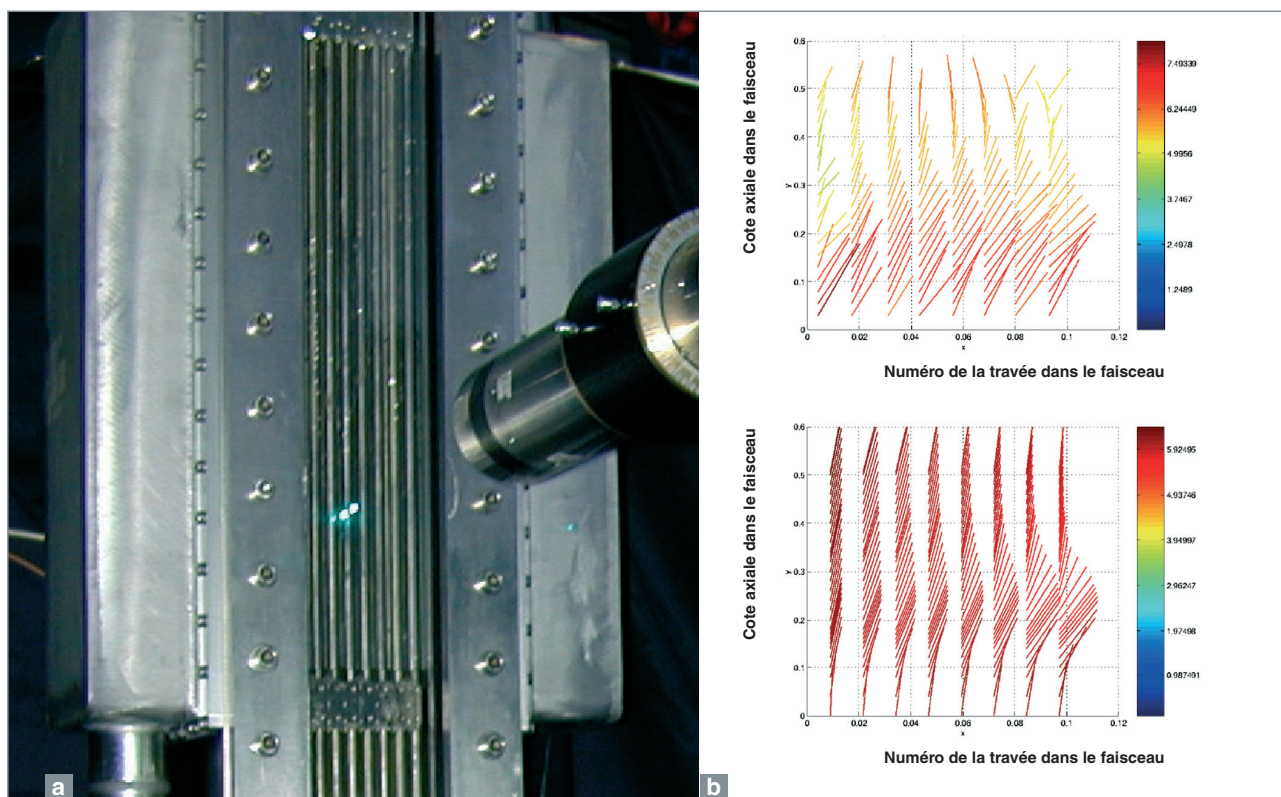


Fig. 50. Photo du banc de vélocimétrie laser installé sur le dispositif expérimental dédié à la caractérisation des écoulements et aux mesures des efforts sur le faisceau combustible (a).

Comparaison entre les mesures des champs de vitesse du fluide au sein du faisceau (en haut) et les calculs effectués à l'aide du code FLICA (en bas). Représentation vectorielle normée des champs de vitesse (b).

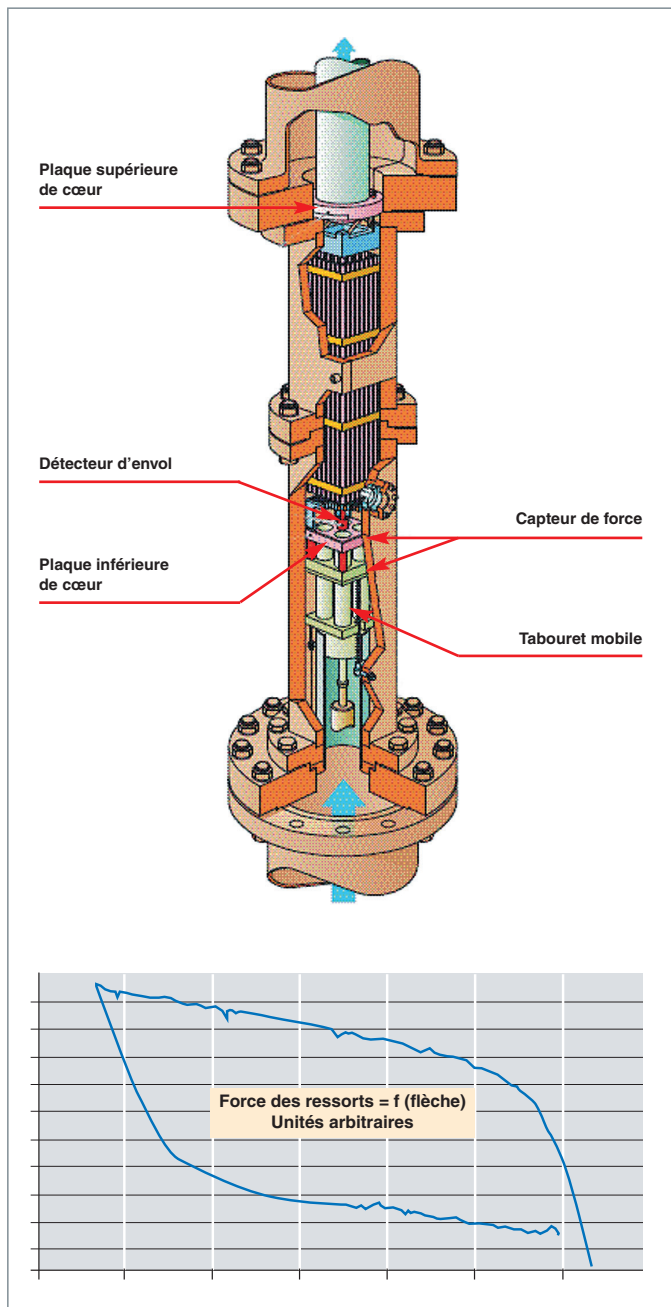


Fig. 51. Schéma du dispositif expérimental dédié à la caractérisation du système de maintien (HERMÈS T/mono assemblage échelle 1) – Illustration de la courbe d'hystérésis obtenue expérimentalement.

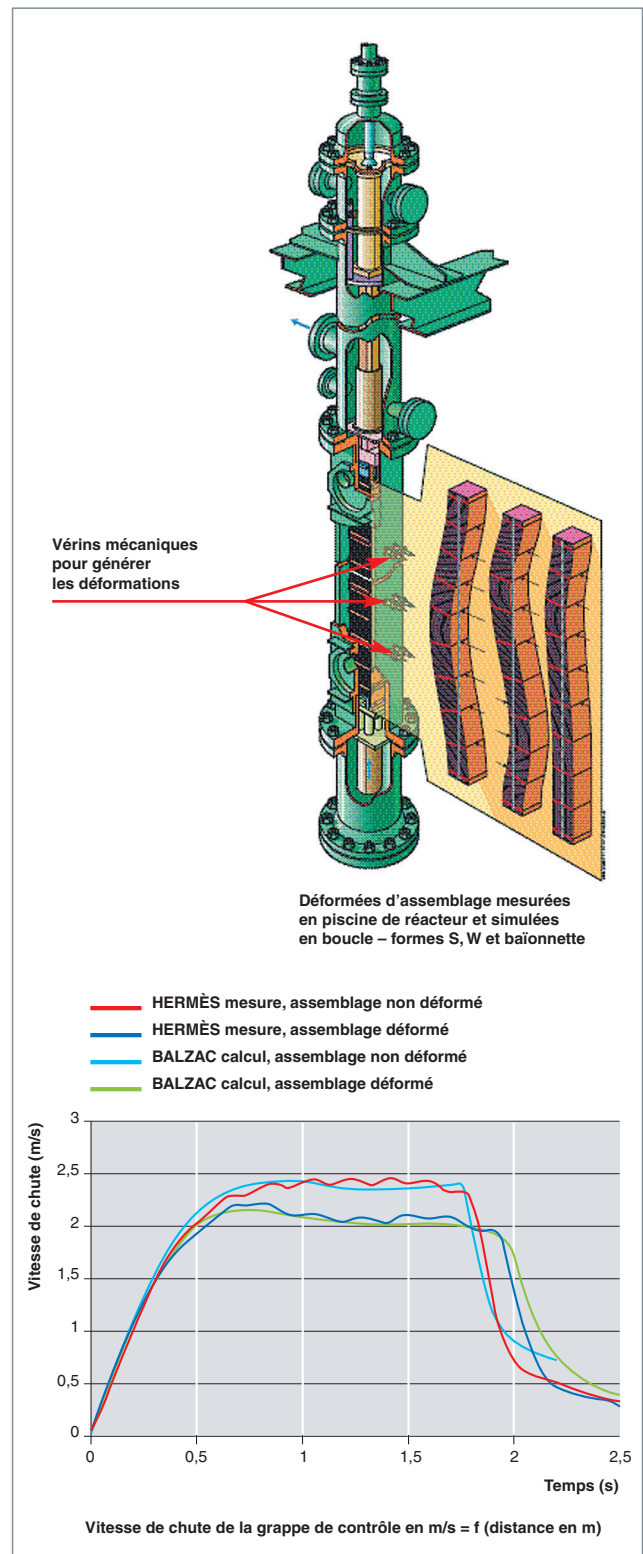


Fig. 52. Schéma du dispositif expérimental dédié à la mesure de cinétique de chute pour différentes déformations de l'assemblage combustible.

Illustration d'une cinétique de chute mesurée :
 - sur un assemblage non déformé (courbe rouge),
 - sur un assemblage déformé en S avec une amplitude de 12 mm (courbe bleue) et comparaison avec la modélisation « BALZAC » associée.

Les vibrations induites par la turbulence de l'écoulement en cœur affectent les crayons combustibles. Elles se traduisent par un mouvement relatif du crayon par rapport à ses supports (ressort et/ou bossette) dans la cellule de grille. Ce mouvement est à l'origine de l'usure par fretting observée sur certaines gaines au droit des contacts. La cinétique de cette usure est modifiée en fonction du maintien du crayon dans la cellule de grille, des états des surfaces en contact et des caractéristiques modales du crayon.

Enfin, le vieillissement au cours des cycles en réacteur se traduit par une diminution de l'effort de serrage du crayon dans la cellule. Elle résulte du fluage ou relaxation sous flux des bossettes et ressorts de grille, de la variation diamétrale du crayon et du grandissement de la grille. Au cours de l'irradiation, on observe aussi une modification des propriétés mécaniques des surfaces liée à l'environnement (chimie du circuit primaire, historique de puissance) et à ses conséquences sur les matériaux de gaine et de structure (corrosion, hydruration, corrosion localisée, action combinée de l'usure mécanique et de l'oxydation ou « tribocorrosion »...). L'irradiation entraîne, enfin, une évolution des caractéristiques mécaniques globales du crayon combustible, telles que l'amortissement structural, au cours de l'irradiation, notamment du fait du rattrapage du jeu pastille-gaine qui se produit sous l'effet du fluage de la gaine soumise à la pression externe de l'eau primaire.

L'augmentation du temps de séjour en réacteur des assemblages peut ainsi conduire à des situations pénalisantes sur le plan de l'usure, sous les effets combinés de ces différents phénomènes de vieillissement.

La vérification préalable de l'endurance de l'assemblage combustible a conduit à mettre en œuvre et à améliorer les dispositifs expérimentaux et protocoles d'essai pour qualifier la tenue à l'usure du gainage avec de nouveaux types de maintien ou de nouveaux matériaux.

Par ailleurs, des outils de modélisation du comportement vibratoire du crayon soumis à la turbulence de l'écoulement améliorent l'interprétation des protocoles expérimentaux. Mais la modélisation de l'usure est complexe, du fait des nombreux paramètres influents à intégrer, et une prédiction satisfaisante de l'usure sur la simple base du calcul de la réponse vibratoire, de la puissance d'usure et de la loi d'Archard [4] ne semble pas suffisante pour traiter les questions liées à l'endurance des assemblages : en effet, bien que l'usure mécanique soit généralement bien décrite par cette loi, l'environnement REP, qui n'est pas pris en compte, influence probablement la cinétique d'usure de façon complexe. C'est pourquoi les essais à caractère qualifiant sont réalisés dans un environnement chimique et thermohydraulique représentatif.

Pour la qualification de la tenue à l'usure du combustible REP, deux démarches, l'une expérimentale et l'autre de modélisation, sont conduites en parallèle. Les protocoles expérimentaux

et les modèles associés ainsi établis mettent en œuvre les ingrédients suivants :

- L'évaluation des chargements mécaniques en cœur et la définition des conditions à appliquer pour leur simulation dans des boucles d'essai hors pile (HERMÈS). Cette étape s'appuie sur des calculs thermohydrauliques ;
- l'évaluation par le calcul de la réponse vibratoire à ces chargements caractérisés par le spectre d'excitation turbulente de l'écoulement. La modélisation de la réponse vibratoire du crayon combustible à la turbulence de l'écoulement, initiée dans les années 90 [5], repose sur des méthodes linéaires sur base modale. L'amplitude vibratoire (σ_r) de la réponse modale (pour le mode r) s'écrit :

$$\sigma_r(x) = F_{\text{fluide}} \times H_{\text{structure}} \times \sqrt{f_{Rr} \overline{\Phi}_{fe}(f_{Rr}) a_r^2} \quad (1)$$

où F_{fluide} est une constante caractéristique du fluide en écoulement, et $H_{\text{structure}}$ est une fonction de transfert caractéristique du comportement modal de la structure.

$\overline{\Phi}_{fe}(f_{Rr})$ est le spectre d'excitation turbulente de l'écoulement (fonction de la fréquence f_{Rr} produit de la fréquence vibratoire par le diamètre du crayon normalisé par la vitesse d'écoulement) et a_r un coefficient modal d'excitation. À noter que les spectres d'excitation turbulente étaient initialement déterminés expérimentalement par mesure directe des efforts sur des maquettes idéales de faisceaux de combustible. Pour diminuer l'écart entre le comportement vibratoire prédit par la modélisation standard présentée ci-dessus et celui constaté par les mesures vibratoires en boucles d'essai, les progrès des outils de traitement du signal ont été mis à profit pour développer une méthode inverse (fig. 53) d'identification de spectres sur structures d'assemblage à échelle réduite plus représentative. Typiquement, les amplitudes vibratoires mesurées sur les structures d'assemblage sont de l'ordre de quelques dizaines de microns pour des fréquences comprises entre quelques hertz pour les assemblages à quelques dizaines de hertz pour les crayons combustibles ;

- l'évaluation – via des expérimentations analytiques – des paramètres d'environnement influents sur la cinétique d'usure (durée de l'essai, température, chimie, compétition usure/corrosion...). Les études visent, d'une part, à évaluer l'impact potentiel des conditions utilisées en boucles d'essais pour réaliser des essais d'endurance accélérés, et, d'autre part, à améliorer à terme la capacité prédictive des modèles visant à prédire l'usure en service ;
- la réalisation de maquettes d'essais représentatives de l'assemblage combustible aux différents stades de sa vie : sur la base de la connaissance du comportement en réacteur des matériaux de grille et du crayon, il est possible d'estimer l'évolution du maintien du crayon sous irradiation.

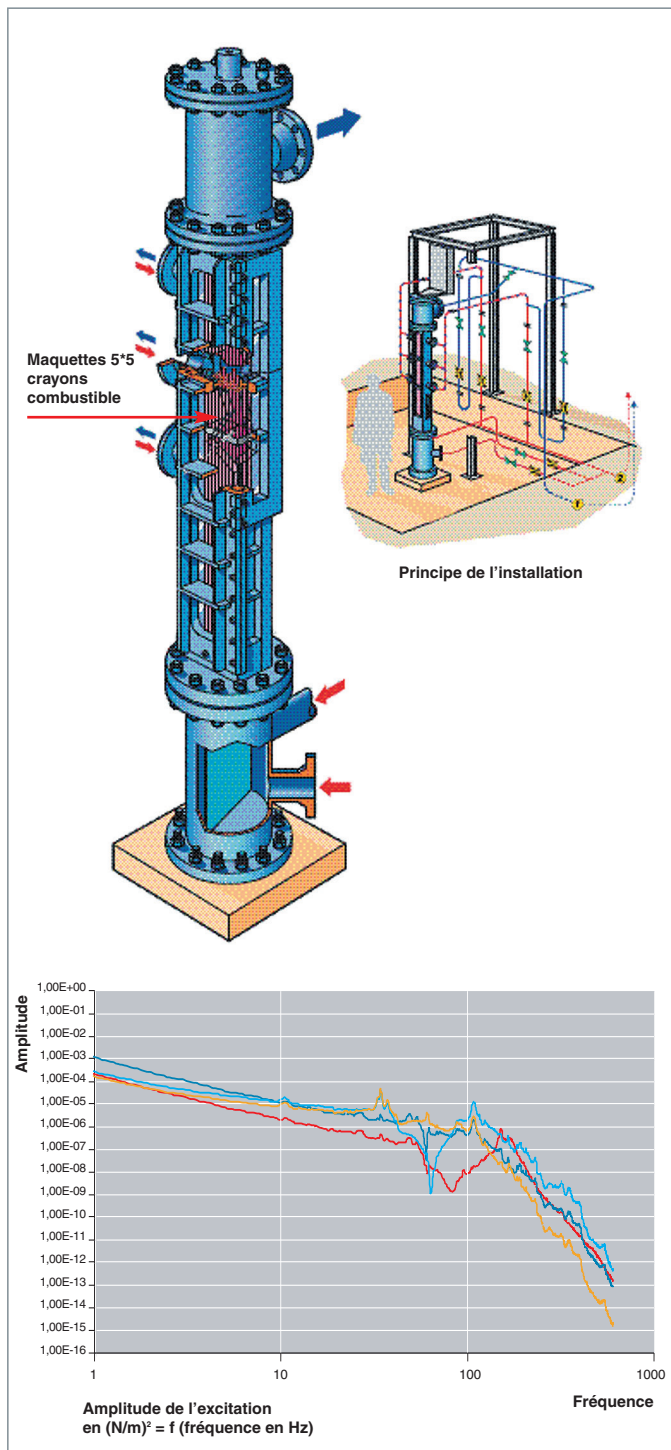


Fig. 53. Schéma du dispositif expérimental dédié à l'évaluation par méthode inverse des spectres d'excitation turbulente de l'écoulement (GRILLON froid) – Illustration du spectre en fréquence des efforts obtenus (donnée d'entrée des codes de calcul de la réponse vibratoire du crayon).

Les données de ces études sont intégrées dans la définition du protocole expérimental de qualification de la tenue à l'usure d'un nouveau design dans une installation hors pile (HERMÈS) aux conditions thermohydrauliques REP [6]. Ce protocole est validé dans sa capacité à reproduire des phénomènes de fretting en grille de maintien inférieure observés en réacteur [2].

L'installation HERMÈS est équipée d'une boucle hydraulique qui simule les conditions thermohydrauliques des REP. La section d'essai permet de créer des conditions d'écoulement variables autour de la maquette d'assemblage (échelle 1) étudiée et de simuler les redistributions d'écoulement transversales observées sur le premier étage dans les cœurs. Ces redistributions sont impliquées dans la localisation préférentielle des usures en grille de maintien inférieure.

Les résultats de ces essais montrent que la distance ressort/bossette est le paramètre influent d'ordre 1 sur l'usure. Pour les cellules présentant des jeux, des usures significatives peuvent se développer avec une cinétique exponentielle.

Le comportement mécanique de l'assemblage en situation accidentelle

Les études d'accident dans le domaine de la mécanique de l'assemblage combustible concernent essentiellement le calcul des forces d'impact sur les grilles, en cas de séisme, et la résistance au **flambage*** des grilles.

Les modèles industriels développés utilisent en donnée d'entrée les résultats des calculs sismiques du bloc réacteur qui sont transformés en mouvement des plaques de cœur et du cloisonnement. Ces derniers éléments constituent les interfaces des assemblages combustibles avec la cuve. Une seule rangée du cœur est considérée et les assemblages combustibles sont modélisés par un modèle bi-poutre (une poutre « tube-guide » et une poutre « crayon ») avec des raidisseurs et amortisseurs de choc au droit des grilles. L'amortissement de l'assemblage est déterminé expérimentalement sur des installations permettant de prendre en compte l'effet de l'écoulement. Il a été démontré, grâce à ces installations, que la contribution du fluide dans l'amortissement total est importante [7] (fig. 54). Les conditions d'extrapolation de ce résultat à la situation d'un assemblage en réacteur sont étudiées expérimentalement et par la modélisation des couplages fluide [8].

Les forces d'impact ainsi calculées sont comparées aux valeurs de flambage des grilles. La connaissance des forces de flambage de grilles irradiées a été étudiée expérimentalement (fig. 55 et 56) [9]. Les forces de flambage mesurées sur ces grilles montrent une diminution de la résistance par rapport à des grilles neuves. Ces écarts s'expliquent par le fait que le paramètre influent d'ordre 1 sur la résistance de la grille

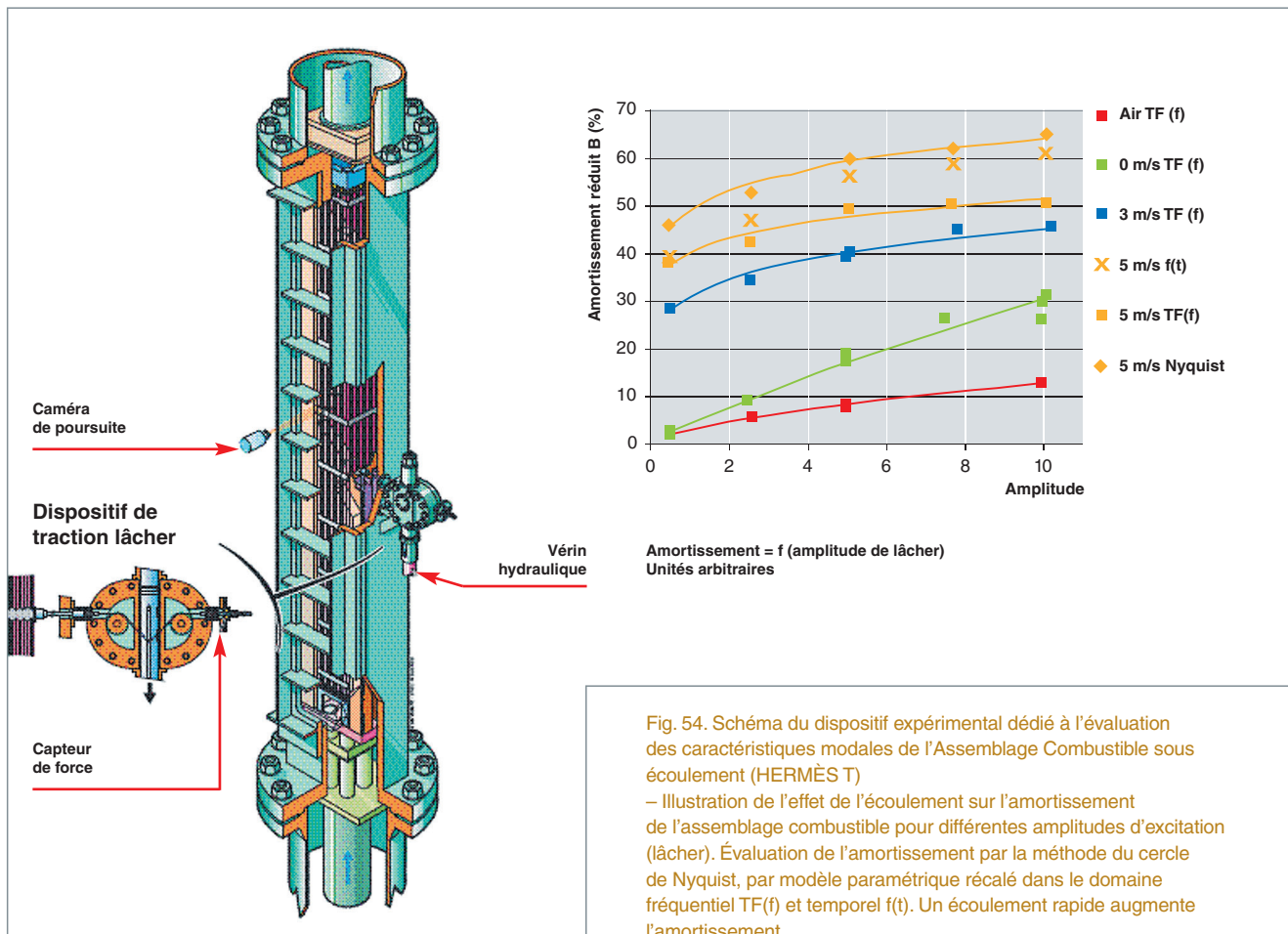


Fig. 54. Schéma du dispositif expérimental dédié à l'évaluation des caractéristiques modales de l'Assemblage Combustible sous écoulement (HERMÈS T) – Illustration de l'effet de l'écoulement sur l'amortissement de l'assemblage combustible pour différentes amplitudes d'excitation (lâcher). Évaluation de l'amortissement par la méthode du cercle de Nyquist, par modèle paramétrique récalé dans le domaine fréquentiel TF(f) et temporel f(t). Un écoulement rapide augmente l'amortissement.

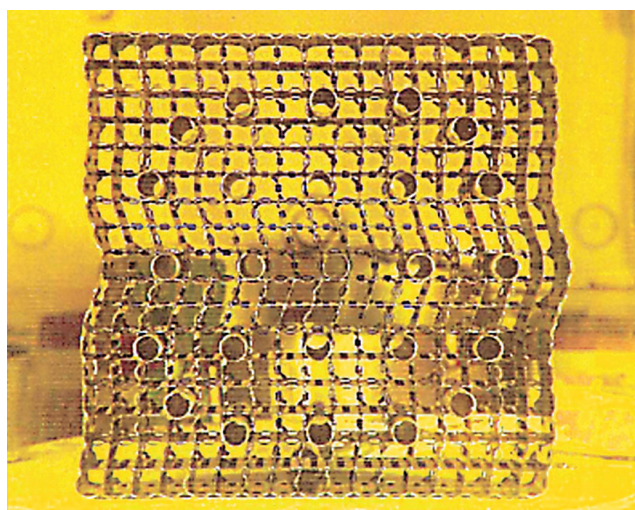


Fig. 55. Photographie d'une grille irradiée après essai de flambage – Illustration de la diminution de la tenue au flambage sur grilles irradiées.

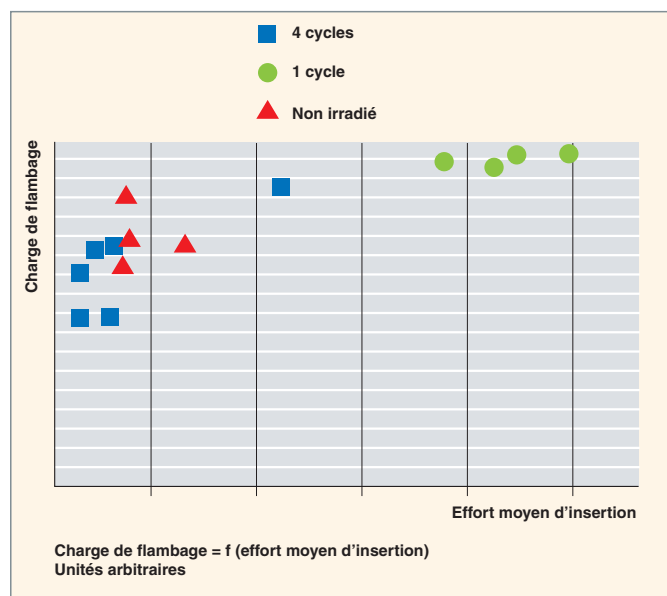


Fig. 56. Graphe de la charge de flambage en fonction de l'effort moyen d'insertion. La charge de flambage diminue avec le nombre de cycles d'irradiation / effet de la relaxation mécanique des ressorts de cellule de grille.

est l'effort de maintien du crayon dans la cellule, qui diminue avec l'irradiation.

Conclusion

Avec pour objectif de renforcer la tenue mécanique des assemblages, les études de conception en cours concernent principalement la mise en œuvre d'une solution visant à réduire le fretting observé en grille de maintien inférieure, d'une part, et à renforcer la tenue mécanique du squelette, d'autre part.

La R&D menée au CEA contribue à améliorer les méthodes de qualification de la tenue mécanique des assemblages combustibles. En évolution constante, elle vise à améliorer :

- Les protocoles expérimentaux pour simuler en boucles hors pile, les chargements vus par l'assemblage au cours de sa vie en réacteur, notamment en utilisant des maquettes simulant l'état « fin de vie » d'un assemblage ;
- les modélisations afin de disposer d'outils qualifiés en assistance à la conception ou dans l'objectif de renforcer les dossiers de justification de la tenue mécanique en conditions accidentelles.

Compte tenu de l'accroissement des taux d'épuisement du combustible, la R&D en cours doit également permettre de s'assurer du maintien de l'intégrité mécanique de la structure hors du cœur, par exemple en piscine ou lors des maintenances.

Dans les années à venir, le combustible devra s'adapter à une grande variabilité de gestion : (cycles longs, courts, de longueur adaptable pour optimiser les arrêts de tranche), des taux de combustion élevés et des fonctionnements plus sollicitants (puissances locales élevées, variations de puissance...). Par ailleurs, l'assemblage combustible devra conserver un haut niveau de fiabilité pour assurer la sûreté de fonctionnement et la disponibilité des réacteurs.

Dans ces conditions, les sollicitations imposées à l'assemblage combustible par son environnement seront de plus en plus importantes (irradiation, hydrauliques...) et induiront un vieillissement accru. La robustesse de tenue mécanique des structures d'assemblage en conditions de fonctionnement normales ou en situations accidentelles devrait donc rester un enjeu important pour les industriels, qu'ils soient concepteurs ou exploitants.

► Références

- [1] W. KLINGER, C. PETIT, J. WILLSE, *Experience and reliability of FRAMATOME ANP's PWR and BWR fuel*, Proceedings of the technical meeting "Fuel failure in water reactors : Causes and mitigation, 17-21 June 2002, Bratislava, Slovakia.
- [2] R. YANG, O. OZZER, H. R. ROSENBAUM, Current challenges and expectations of high performance fuel for the millennium, *Light Water Reactor Fuel Performance Meeting*, 10-13 April 2000, Park City, USA.
- [3] B. COLLARD, *Rod cluster control assembly drop kinetics with seismic excitation*, Proceedings of the Eleventh International Conference on Nuclear Engineering, 20-23 April 2003, Tokyo, Japan.
- [4] J.-F. ARCHARD, *Friction between metal surfaces*, *Wear* **3-16** (1986).
- [5] J. RIGAUDEAU, E. MOREL, *Flow induced vibration analysis of PWR fuel rods validated from a variety of in-loop tests*, Proceedings of PVP – Flow induced vibration – ASME 2001, Volume 420-2 : Axial flow, piping systems : other topics, 22-26 July 2001, Atlanta, USA.
- [6] J. VALLORY, *Methodology of PWR fuel rod vibration and fretting evaluation in HERMES facilities*, Light Water Reactor Fuel Performance Meeting, 19-22 September 2004, Orlando, USA.
- [7] B. COLLARD, S. PISAPIA, S. BELLIZZI, D. BROU, *Flow induced damping of a PWR fuel assembly*, Proceeding of FIV 2004, 6-9 Juillet 2004, Palaiseau, France.
- [8] D. BROU *and al.*, *Seismic behaviour of PWR reactor cores : whole core model with fluid structure interaction effects*, Proceeding of FIV 2004, 6-9 Juillet 2004, Palaiseau, France.
- [9] P. YVON *and al.*, *Results of crush tests performed on irradiated PWR Zircaloy-4 spacer grids*, Proceedings of the Eleventh International Conference on Nuclear Engineering, 20-23 April 2003, Tokyo, Japan.

Joëlle VALLORY,

Département de technologie nucléaire

et Thierry FORGERON,

Direction de soutien au nucléaire industriel

Le combustible en situation accidentelle

Les conditions de fonctionnement d'un réacteur se répartissent en 4 classes :

Classe 1	Fonctionnement normal de la chaudière	Ce mode de fonctionnement inclut des variations de puissance de la chaudière. Certains transitoires sont journaliers, lents et de forte amplitude (jusqu'à 70 % de la puissance nominale) ; d'autres sont rapides, avec des amplitudes faibles (+-5% autour de la puissance moyenne). Ces variations de puissance et de température sollicitent tous les composants de l'élément combustible, qui doivent être dimensionnés pour pouvoir les accepter. L'intégrité des crayons est assurée. Toutefois, le système de purification du circuit primaire permet le fonctionnement du réacteur avec quelques crayons non étanches.
Classe 2	Incidents de fréquence modérée (occurrence annuelle par réacteur $0.01 < f < 1$)	Anomalie déclenchant les systèmes de sécurité. Pas de rupture de la gaine.
Classe 3	Incidents de fréquence faible ($10^{-4} < f < 10^{-2}$)	Endommagement d'une ou plusieurs barrières et relâchement de produits radioactifs, mais faible fraction de crayons endommagés.
Classe 4	Accidents importants et hypothétiques ($10^{-6} < f < 10^{-4}$) Ces accidents sont qualifiés d'importants pour les conséquences qu'ils pourraient avoir mais d'hypothétiques pour les probabilités d'occurrence qui leur sont associés (ex : Three Mile Island).	Endommagement massif des barrières. Plusieurs types d'accidents : <ul style="list-style-type: none"> • APRP (accident de perte de réfrigérant primaire, avec augmentation de la température gaine, oxydation et production d'H_2). • RIA (accident de réactivité, avec dépôt d'une grande quantité d'énergie en qq 10 ms, libération de gaz occlus dans le combustible). • SDD (séisme de dimensionnement).

Le combustible, lors d'un accident de perte de réfrigérant primaire (APRP)

Introduction aux transitoires accidentels de type APRP – Description synthétique des aspects thermo-hydraulique et combustible

L'accident de type perte de réfrigérant primaire (APRP) est un accident de classe 4 (probabilité d'occurrence dans un réacteur de puissance comprise entre 10^{-4} et 10^{-6} par an). Il fait l'objet d'un important programme d'études. Sur le plan thermo-hydraulique, suite à l'instant initial constitué par la perte de réfrigérant, un tel transitoire accidentel se déroule en quatre phases schématisées sur la figure 57 (les fissions ont été arrêtées dès le début de l'évènement par la chute des barres, seule reste la puissance résiduelle du réacteur) :

1. Une phase de chauffage de la gaine et du combustible sous l'effet de sa puissance résiduelle (10 à 20 W/cm). Le gradient radial initial de température, existant dans le crayon combustible à la fin du fonctionnement en puissance, laisse rapidement place à une distribution quasi-isotherme. Le chauffage a lieu dans une ambiance de vapeur d'eau, avec une cinétique de 10 à 20 °C/s. Ces conditions provoquent une oxydation externe de la gaine, avec, le cas échéant, un ballonnement local de celle-ci sous l'effet de la pression interne, qui peut aller jusqu'à la perte d'étanchéité (fig. 58). Dans ce cas, une partie de l'inventaire des produits radioactifs disponibles dans le crayon (jeu combustible-gaine, porosités ouvertes et contenu des joints de grains du com-

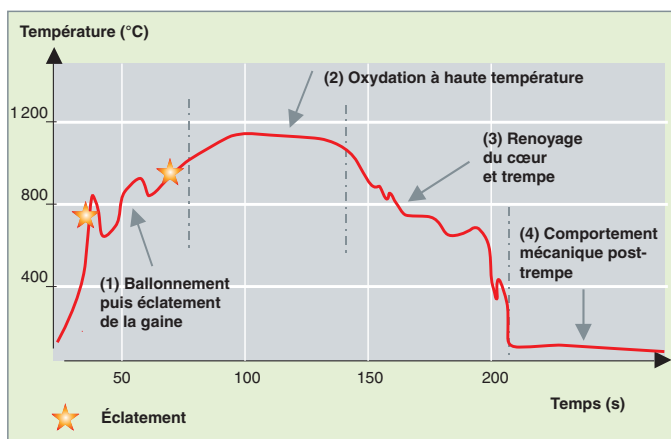


Fig. 57. Schéma d'un transitoire de température de la gaine lors d'un accident de perte de réfrigérant primaire. Conséquences sur le comportement du gainage combustible.

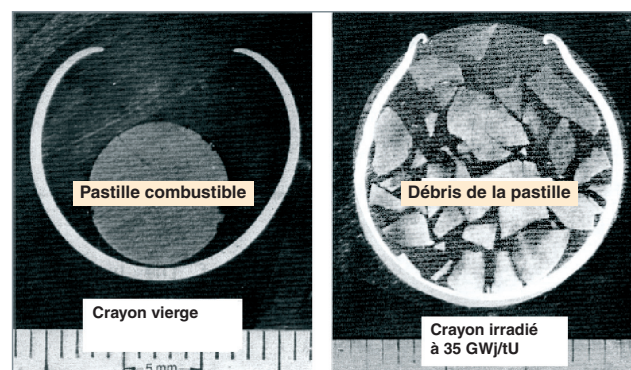


Fig. 58. Aspect de crayons expérimentaux (vus en coupe) suite à une séquence APRP (essais allemands FR2).

combustible) est relâché dans le circuit primaire. Il s'agit essentiellement des isotopes des gaz rares xénon et krypton : des études spécifiques ont été conduites au CEA pour déterminer les quantités de gaz de fission susceptibles d'être relâchées par le combustible dans ces situations particulières [1] ;

2. un équilibre à haute température (entre 900 et 1 200 °C selon les crayons) est ensuite atteint et dure plusieurs dizaines de secondes. Cette température d'équilibre peut être modifiée s'il s'est produit, au moment du ballonnement, une re-localisation axiale du combustible consécutive à une fragmentation de celui-ci et à une chute de fragments : on peut avoir alors localement une puissance résiduelle supérieure à la valeur moyenne ;

3. une phase de refroidissement brusque des crayons (et notamment de la gaine, pouvant s'apparenter à une « trempe* ») intervient lors du renoyage du cœur par les systèmes de refroidissement de secours. En cas de rupture de gaine ouverte, la remise en eau entraîne un « lessivage » des volumes libres internes des crayons non étanches et peut provoquer un relâchement supplémentaire de produits de fission radioactifs : gaz rares, mais aussi isotopes volatils (iode, tellure et césium, par exemple), voire non volatils (produits de fission métalliques, par exemple). Les capacités de refroidissement du cœur dépendent toutefois de l'ouverture des espaces inter-crayons, qui peuvent être réduits en cas de ballonnement excessif des gaines (voir fig. 58). Ce point conditionne fortement le scénario de sortie de la séquence accidentelle ;

4. une phase post-accidentelle, dans laquelle, selon les critères de sûreté, les éléments de combustible doivent pouvoir être refroidis et manutentionnés.

Incidence des transitoires APRP sur le comportement thermo-métallurgique-mécanique du gainage en alliage base zirconium

Les tubes de gaine constituant la première barrière de confinement du combustible, leur intégrité lors d'un transitoire APRP est un paramètre clé et doit, de ce fait, être tout particulièrement étudiée. En particulier, en plus de la capacité de refroidissement évoquée précédemment, les critères de sûreté imposent que la gaine résiste à la trempe et garde une ductilité résiduelle non nulle après oxydation jusqu'à 1 200 °C et pour un taux d'oxydation spécifié. Cette problématique a donc conduit, depuis près de trente ans, les chercheurs, au CEA comme au niveau international, d'une part, à reproduire au mieux des transitoires les plus représentatifs (essais intégraux menés, par exemple, dans le réacteur PHÉBUS) en développant des codes de calculs associés (CATHARE) et, d'autre part, à mener une R&D plus analytique pour comprendre, quantifier et modéliser les phénomènes thermiques, métallurgiques et mécaniques se développant au sein du matériau de gainage. C'est cette dernière voie de recherche qui est illustrée ci-après. On peut ainsi reprendre les quatre phases typiques du transitoire APRP (fig. 57), en décrivant plus précisément leurs conséquences respectives sur le comportement du gainage.

Lors de la phase 1, il faut être capable de décrire le comportement en ballonnement-rupture des tubes de gaine. Pour ce

faire, le CEA a développé depuis vingt ans des essais thermomécaniques analytiques (installation « EDGAR ») associés à des études et à une modélisation métallurgique de la cinétique de la transformation de phases **allotropique*** Alpha \leftrightarrow Bêta se produisant dans la matrice base Zr – cette transformation métallurgique ayant une influence directe sur la réponse thermomécanique du matériau [2]. On notera, à ce titre, que des travaux plus fondamentaux sur les mécanismes de fluage, en particulier dans le domaine biphasé Alpha/Bêta, sont menés en partenariat avec l'École des Mines de Paris (*Thèses : S. Fréchet – 2001 et D. Kaddour – 2006*). L'ensemble de ces études conduit à identifier des modèles thermo-métallurgique-mécaniques de fluage en pression interne et critère de rupture du gainage en conditions isotherme et anisotherme – modèles implantables *in fine* dans les codes de calcul APRP plus globaux.

Les phases 2 à 4 du transitoire correspondant à une oxydation accélérée de la gaine jusqu'au refroidissement final, il faut garantir la tenue mécanique à la trempe et post-trempe. Au CEA, les essais d'oxydation haute température (HT) sont conduits dans deux installations complémentaires: « Cinog » à Grenoble et « Dezirox » à Saclay. Après oxydation HT, différents types d'essais mécaniques « post-trempe » sont réalisés pour caractériser la ductilité résiduelle des gaines [3]. En support à ces essais, des analyses métallurgiques et fractographiques sont menées de manière systématique afin de mieux appréhender les paramètres physiques et microstructuraux responsables des comportements macroscopiques observés. Actuellement, ces études conduisent, par exemple, à faire appel à des analyses nucléaires pour quantifier et « cartographier » les concentrations locales en oxygène (et bientôt en hydrogène) dans l'épaisseur des tubes, ces paramètres s'avérant critiques vis-à-vis du seuil de fragilisation des gaines oxydées HT (fig. 59).

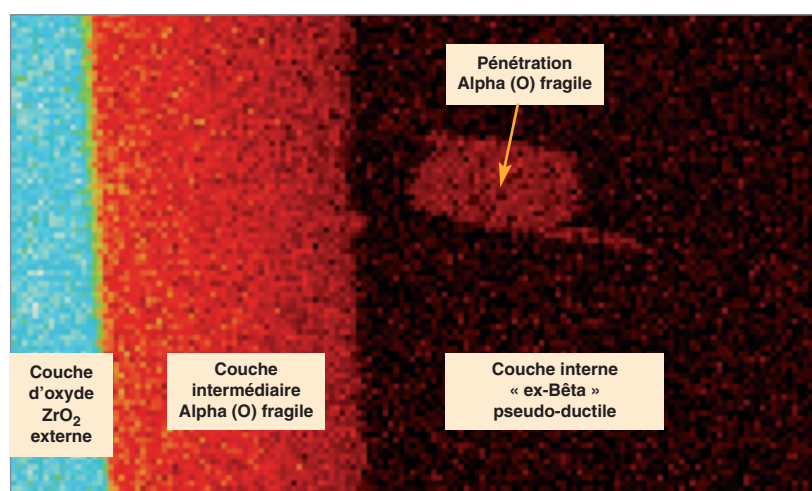


Fig. 59. Cartographie de l'oxygène dans l'épaisseur d'une gaine oxydée à haute température obtenue à la microsonde nucléaire – pas d'analyse = 2µm

(*) collaborations avec DSM : accélérateur Van de Graaff INSTN et microsonde nucléaire Pierre Süe.

On notera, enfin, que le CEA a été le premier à mettre en évidence et à quantifier l'impact du « séjour en service » sur le comportement APRP d'un gainage irradié à fort taux. Les études analytiques réalisées ces dernières années [4] [5] – à la fois en froid et en chaud – ont permis de vérifier l'hypothèse selon laquelle l'influence majeure du vieillissement en service était liée à la prise d'hydrogène du gainage (issue de la corrosion en service), les défauts d'irradiation présents dans le matériau irradié étant rapidement restaurés lors de la première montée en température (phase 1) du transitoire APRP. Les figures 60 et 61 illustrent, à ce sujet, deux résultats importants obtenus récemment au CEA :

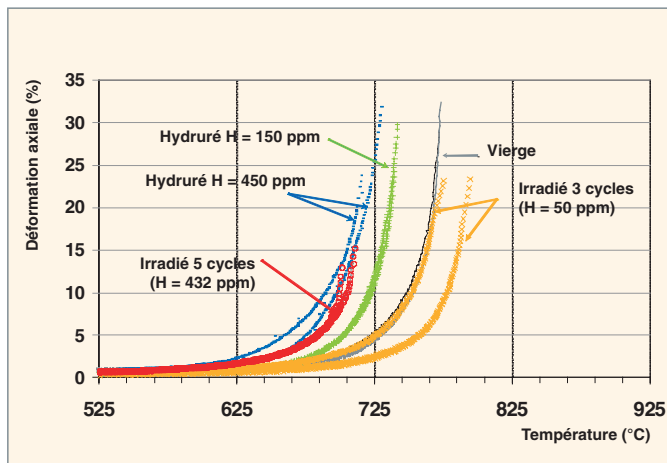


Fig. 60. Fluage du Zy-4 préhydruré et/ou irradié lors d'une rampe à 100°C/s sous chargement uni-axial de 80MPa [5].

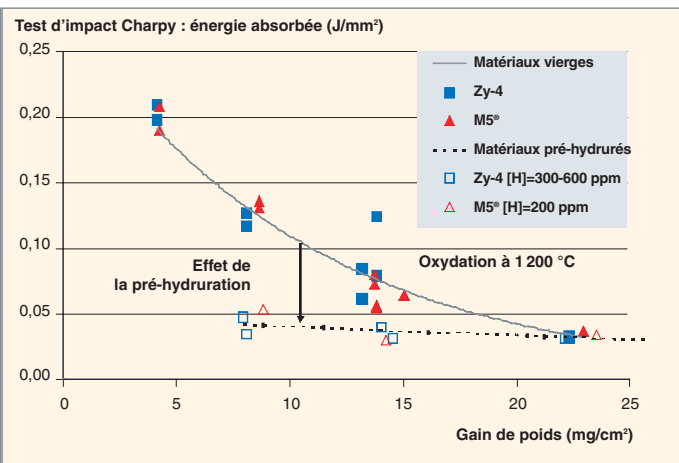


Fig. 61. Essais post-oxydation-trempe - Évolution de l'énergie à rupture en fonction du taux d'oxydation HT - influence d'une pré-hydruration [5].

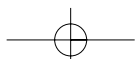
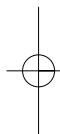
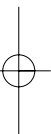
1. L'impact de l'hydrogène sur le fluage en rampe dynamique typique de la première phase du transitoire APRP. Il a été démontré que cet effet était étroitement corrélé à l'effet dit « Bêta-gène » de l'hydrogène qui conduit à une diminution des températures de transformation de phases Alpha \leftrightarrow Bêta, ce qui se manifeste sur les courbes de fluage en rampe par un décalage des températures à rupture vers les basses températures (fig. 60) ;
2. l'effet fragilisant de l'hydrogène post-oxydation-trempe, comme le souligne la figure 61 qui montre l'évolution de l'énergie consommée à rupture (essais de choc de type Charpy) en fonction du taux d'oxydation et de la teneur nominale en hydrogène. En effet, on peut observer sur cette figure que le palier bas en énergie – correspondant à une rupture de type fragile – est atteint rapidement pour les échantillons hydrurés.

Actuellement, ce sujet est tout particulièrement discuté au niveau international des autorités de sûreté (NRC, IRSN, OCDE-IAEA,...) qui envisagent une révision des critères de sûreté prenant en compte ces nouveaux éléments.

► Références

- [1] Y. PONTILLON, M.-P. FERROUD-PLATTET, D. PARRAT *et al.*, « *Experimental and theoretical investigation of fission gas release from UO₂ up to 70 GWd/t under simulated LOCA-type conditions: The GASPARD programme* », 2004 International Meeting on LWR Performance, 19-22 September 2004, Orlando (USA).
- [2] T. FORGERON, J.-C. BRACHET *et al.*, « *Experiment and modelling of advanced fuel rod behaviour under LOCA conditions : $\alpha\leftrightarrow\beta$ phase transformation kinetics and EDGAR methodology* », 12th. Symposium on Zirconium in the Nuclear Industry, Toronto, (1998), ASTM STP 1354, (2000), p. 256-278.
- [3] J.-C. BRACHET, J. PELCHAT, *et al.*, « *Mechanical behavior at room temperature and metallurgical study of low-Tin Zy-4 and M5° (Zr-NbO) alloys after oxidation at 1 100 °C and quenching* », TCM on « Fuel behavior under transient and LOCA conditions » organised by IAEA, Halden, (2001), IAEA TECDOC (2002)
- [4] J.-C. BRACHET, L. PORTIER, L., T. FORGERON, *et al.*, « *Influence of hydrogen content on the $\alpha\leftrightarrow\beta$ phase transformation temperatures and on the thermal-mechanical behavior of Zy-4, M4 (ZrSnFeV) and M5° (ZrNbO) alloys during the first phase of LOCA transient* », Zirconium in the Nuclear Industry: 13th. Int. Symposium, Annecy, (2001), ASTM STP 1423, (2002), p. 673-701.
- [5] L. PORTIER, T. BREDEL, J.-C. BRACHET, V. MAILLOT *et al.*, « *Influence of long service exposures on the thermal-mechanical behavior of Zy4 and M5° alloys in LOCA conditions* », 14th Int. Symp. on Zr in the Nucl. Ind., Stockholm, (2004), à paraître dans ASTM-STP.

Daniel PARRAT,
Département d'études des combustibles,
et Jean-Christophe BRACHET,
Département des matériaux pour le nucléaire



Le combustible, lors d'un accident de réactivité

L' accident de réactivité **RIA*** (de l'anglais *Reactivity Insertion Accident*) est un accident de dimensionnement de classe 4 (fréquence d'occurrence évaluée entre 10^{-4} et 10^{-6} par réacteur et par an), l'un des plus contraignants pour la conception des réacteurs à eau sous pression. Il résulte de l'éjection d'une **grappe*** de commande, suite à la rupture et à la dépressurisation consécutive de son mécanisme de maintien.

Cet accident produit une augmentation très rapide de la réactivité du cœur, qui induit un transitoire de puissance avec un dépôt significatif d'énergie dans les crayons combustibles situés au voisinage de la grappe éjectée (fig. 62).

La première phase de l'accident, provoquée par l'action des **neutrons prompts*** de fission, s'étend sur quelques dizaines de millisecondes. Elle se caractérise par une forte interaction mécanique entre le combustible et la gaine, en raison de l'expansion volumique de l'oxyde induite par l'échauffement adiabatique ainsi que par la pression exercée par les gaz de fission¹. En cas de rupture de gaine, lors de cette phase initiale, une dispersion de combustible sous forme de petits fragments peut alors conduire à la vaporisation brutale de l'eau entourant le crayon. Cette réaction nucléaire en neutrons prompts s'arrête d'elle-même par échauffement du combustible et effet **Doppler***.

La deuxième phase de l'accident, caractérisée par l'évolution thermique du système, s'étend sur une durée de quelques secondes à une dizaine de secondes. Elle conduit à un accroissement significatif de la température de la gaine avec risque d'atteinte de la crise d'ébullition dans le canal d'eau qui l'entoure, et au maintien d'une forte pression interne du crayon, pouvant là encore affecter l'intégrité de la gaine.

Les critères de sûreté

Les critères de sûreté actuels relatifs à cet accident ont été établis au début des années 1980 sur la base d'expériences réalisées aux États-Unis (programmes SPERT et PBF) puis au Japon (programme NSSR) sur du combustible vierge ou faiblement irradié (jusqu'à 30 GWj/tU). Ils se traduisent principalement par un principe de non-dispersion du combustible et par une valeur limite d'enthalpie moyenne déposée dans le

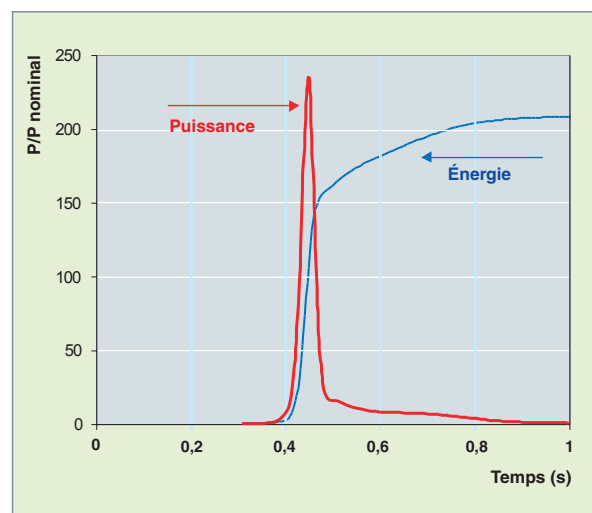


Fig. 62. Évolution de la puissance et de l'énergie injectée lors d'un accident de réactivité en fonction du temps.

combustible à ne pas dépasser au cours du transitoire (230 cal/g pour le combustible vierge et 200 cal/g pour le combustible irradié), de façon à garantir l'absence de dégagement significatif d'énergie mécanique et préserver le refroidissement du cœur ainsi qu'à éviter tout risque d'explosion vapeur.

L'optimisation des gestions de cœur des REP a conduit les industriels à l'augmentation des taux de combustion des assemblages et à l'introduction du combustible MOX. Ces évolutions ont motivé l'initiation de nouveaux programmes expérimentaux au CEA et à l'IRSN visant à assurer la sûreté de ces combustibles à performances accrues.

Le programme de recherche CABRI

C'est ainsi que le programme expérimental Cabri-REP Na a été lancé par l'IRSN dans la boucle à sodium du réacteur Cabri du CEA. De 1993 à 2000, huit essais avec du combustible UO_2 à fort taux de combustion (jusqu'à 65 GWj/tU) et quatre essais avec du combustible MOX (taux de combustion variable de 28 à 65 GWj/tM) ont été réalisés à partir de crayons industriels reconditionnés. Ces essais simulent la première phase de l'accident au cours de laquelle une forte interaction mécanique pastille-gaine se produit sans échauffement significatif de la gaine. Notons que la phase avancée du transitoire en conditions représentatives du réacteur (échauffement de la gaine, forte pression interne) fera l'objet du pro-

1. Pour plus de détails sur la phénoménologie de l'interaction pastille-gaine, se reporter au chapitre « L'interaction pastille-gaine, p. 41 ».

gramme CIP (Cabri International Programme) que l'IRSN a prévu de réaliser dans la future boucle à eau pressurisée (BEP) du réacteur Cabri, dans le cadre d'une large coopération internationale sous les auspices de l'OCDE et en étroite collaboration avec EDF et le CEA.

Le programme Cabri a permis d'étudier l'influence de différents paramètres : nature du combustible (UO_2 et MOX), taux de combustion, épaisseur de corrosion de la gaine, état de la couche corrodée (en particulier, avec ou sans desquamation), matériaux de gainage (Zy4 ou M5[®]) et caractéristiques du transitoire de puissance (énergie déposée et largeur du pulse injecté).

Un autre aspect important est le développement du code SCANAIR. Sa caractéristique principale est de traiter les phénomènes intimement couplés que sont la thermique, la mécanique du crayon et le comportement en transitoire des gaz de fission, à partir d'un état initial du crayon issu d'un calcul d'irradiation. En support au développement de ce code et à la compréhension détaillée des phénomènes physiques, des programmes d'essais analytiques complémentaires ont également été entrepris par des équipes du CEA : le programme PROMETRA relatif à l'élaboration des lois de comportement du gainage dans les conditions particulières de sollicitations spécifiques à ce type d'accident et le programme PATRICIA dédié à l'étude des transferts thermiques gaine-eau, lors de transitoires rapides d'échauffement de la gaine.

Principaux enseignements du programme CABRI

La conséquence immédiate du transitoire rapide de puissance est l'échauffement suivi de la dilatation thermique du combustible, qui, associée au gonflement dû aux gaz de fission (au-delà d'une enthalpie du combustible de 110 cal/g), conduit à une forte interaction mécanique pastille-gaine, principalement pendant la phase initiale du transitoire prompt.

Concernant le combustible UO_2 , si la gaine est peu corrodée et non desquamée, cette interaction mécanique, même amplifiée à fort taux de combustion par la contribution des gaz de fission et la fragmentation du combustible dans la zone périphérique qui est la plus sollicitée, n'est pas suffisante pour conduire à la rupture de la gaine.

À l'inverse, lorsque la gaine en Zy4 est fortement corrodée et desquamée, la rupture du crayon peut se produire, même à de faibles niveaux d'enthalpie injectée (rupture à 30 cal/g lors de l'essai REP Na1, bien en dessous du critère de 200 cal/g). Elle est causée par la réduction de la ductilité de la gaine, liée

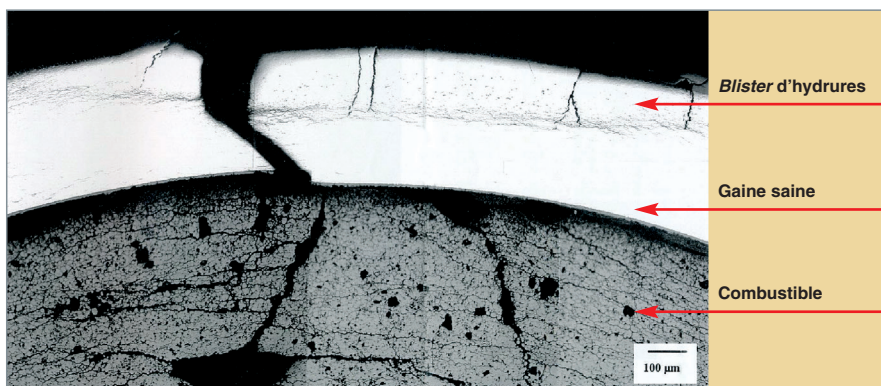


Fig. 63. Coupe métallographique du crayon REP Na 8 après essai CABRI, illustrant la présence d'un « blister » d'hydrure en périphérie de la gaine avec amorce de rupture fragile et faciès ductile à l'intérieur.

à la concentration locale d'hydrures résultant de la desquamation initiale. En effet, les « blisters » d'hydrures constituent des sites d'amorçage de rupture fragile. Celle-ci peut se poursuivre de manière ductile dans la zone interne saine mais hydrurée et d'épaisseur réduite, dès que la contrainte locale atteint la charge à la rupture (fig. 63).

L'introduction dans le parc REP de l'alliage M5[®], bien moins sensible à la corrosion et à la prise de masse en hydrogène, apporte, sur ce point, une marge de sûreté significative.

Concernant le combustible MOX, le rôle joué par les gaz de fission est accru par rapport à l' UO_2 et peut contribuer à la rupture du crayon, même avec une gaine saine et peu corrodée (cas de REP Na7). En effet, du fait de la structure hétérogène du MOX avec présence d'amas riches en plutonium, la quantité de gaz de fission disponibles aux joints de grains est plus élevée que sur l' UO_2 . Lors d'un transitoire rapide de puissance, la surpression des bulles de gaz provoque l'éclatement des joints de grains et la fragmentation du combustible (fig. 64). Cela accroît potentiellement le chargement mécanique de la gaine avec risque de rupture et d'éjection de combustible finement fragmenté.

L'amélioration du comportement du MOX en transitoire passe par le développement de nouveaux combustibles plus performants permettant de diminuer la quantité de gaz précipité dans les bulles des amas plutonifères, consécutivement à la restructuration de ces derniers.

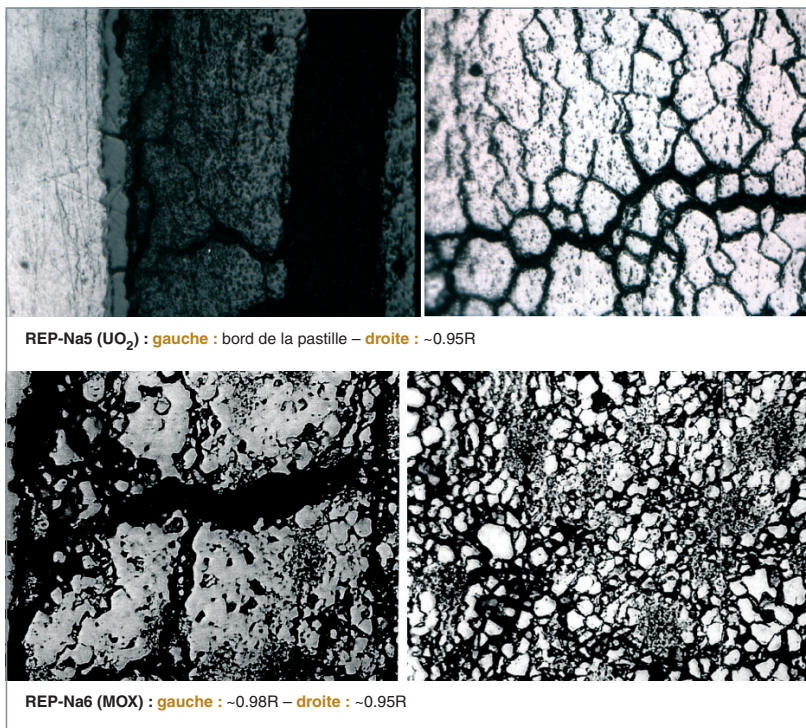


Fig. 64. Fragmentation du combustible avec rupture et dé-cohésion des joints de grains consécutive à la forte pressurisation due aux gaz de fission, lors du transitoire.

► Bibliographie

H. BAILLY, D. MÉNESSIER et C. PRUNIER, « *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides* », Éditions Eyrolles.

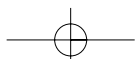
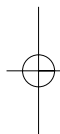
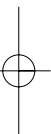
J. PAPIN, « *Le programme de recherche Cabri pour l'étude des accidents de réactivité* », Rapport scientifique et technique de l'IRSN 2002.

J. PAPIN *et al.* « *Synthesis of Cabri-RIA tests interpretation* », Eurosafe, 26 novembre 2003, Paris.

E. CASANOVA, « *Comportement des gaz de fission dans un combustible irradié lors d'un transitoire de puissance* » thèse de l'université de Provence, mars 1998.

Gérard Ducros,

Département d'études des combustibles



Le combustible, lors d'un accident grave

On appelle « accidents graves » les situations hypothétiques pour lesquelles, à partir d'un évènement initiateur, par exemple une brèche dans le circuit primaire, la défaillance successive des systèmes de protection et de sauvegarde conduirait à une fusion plus ou moins complète du cœur. Ces situations, de probabilité inférieure à 10^{-5} par réacteur et par an, ne font pas partie du dimensionnement, mais font l'objet d'études destinées à en évaluer les conséquences.

Suite à l'accident survenu en 1979 dans la centrale nucléaire américaine de Three Mile Island, les organismes de sûreté ont étendu le dispositif en vigueur de défense en profondeur pour gérer de telles situations, en mettant en œuvre des moyens de prévention et de mitigation, de façon à ce que les conséquences de l'accident ne soient pas inacceptables pour les populations. On peut citer, en particulier, pour les réacteurs REP français, l'instauration des procédures ultimes, par exemple la procédure U5 de décompression volontaire de l'enceinte avec filtration contrôlée des rejets radioactifs.

Le déroulement d'un accident grave suit la phénoménologie suivante (fig. 65) :

- Suite à la vidange du circuit primaire et au dénoyage du cœur, le combustible s'échauffe sous l'action de la puissance résiduelle dégagée par les produits de fission (PF) qu'il contient ; le cœur se dégrade (oxydation exothermique de la gaine en zircaloy des crayons par la vapeur d'eau et production associée d'hydrogène) jusqu'à la formation d'un mélange de matériaux en fusion, appelé **corium*** ($UO_2 + ZrO_2 +$ matériaux de structure du cœur), pouvant atteindre $3000\text{ }^{\circ}\text{C}$; le corium s'écoule à travers le cœur et se relocalise dans le fond de la cuve qu'il chauffe à son tour ;
- le rassemblement de matières fissiles en fond de cuve peut causer des risques de **re-criticité*** ;
- pendant la phase de dégradation du cœur, des produits de fission (PF) sont relâchés par les crayons combustibles, d'abord les gaz de fission et les PF volatils (iode, césium, tellure), puis une fraction des PF peu volatils et des actinides ;
- les aérosols formés et les vapeurs de PF sont transportés par l'écoulement de vapeur d'eau enrichie en hydrogène vers le circuit primaire et atteignent l'enceinte de confinement. Ils peuvent se déposer partiellement et être remis en suspension, par la suite ;

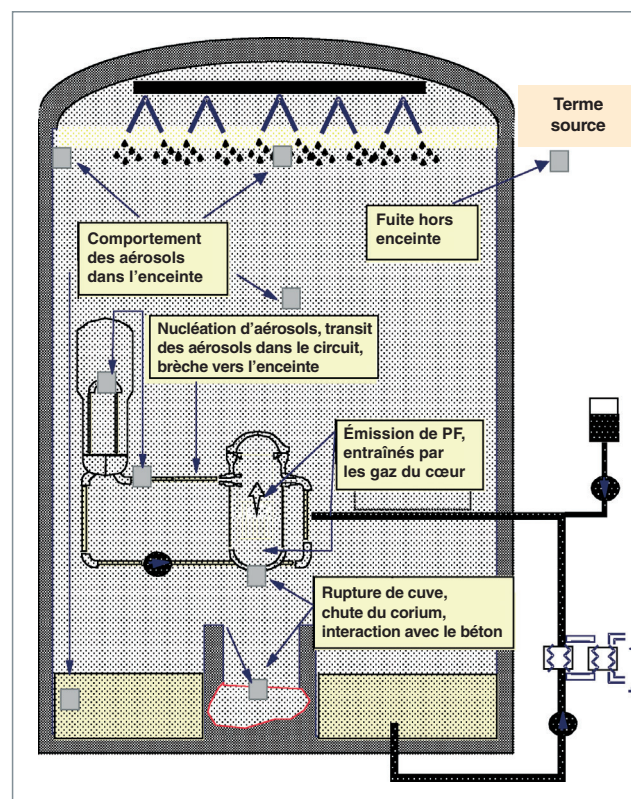


Fig. 65. Faits et événements en jeu, lors d'un accident grave.

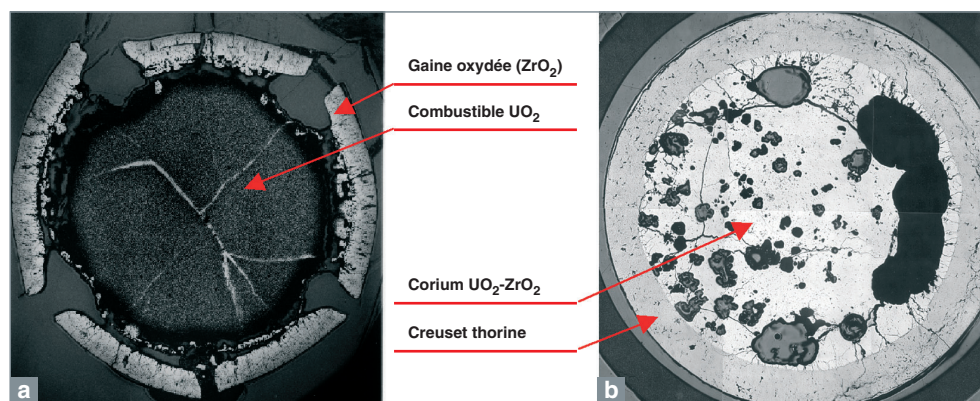
- après la rupture éventuelle du fond de la cuve, le corium est éjecté dans le puits de cuve sous l'effet de la pression primaire ; une fraction du corium à haute température peut être entraînée directement dans l'enceinte de confinement et contribuer à son échauffement, alors que le corium restant dans le puits de cuve interagit avec le béton du radier, conduisant à son ablation et à la libération de gaz incondensables (H_2 , CO , CO_2 ...) dans l'enceinte ;
- l'atmosphère de l'enceinte de confinement se réchauffe et sa pression augmente (risque d'explosion de vapeur) ; une combustion de l'hydrogène formé par dissociation de l'eau surchauffée peut survenir et induire un chargement dynamique complémentaire de l'enceinte (risque d'explosion hydrogène) ;
- une partie des PF, sous forme d'aérosols ou de gaz peut alors sortir de l'enceinte via différents chemins de fuite ou par éventage et provoquer une contamination radioactive de l'environnement : c'est ce relâchement de PF qui est pris en

compte par les autorités de sûreté pour le dimensionnement des plans d'intervention. Parmi ces PF, l'iode joue un rôle prépondérant vis-à-vis des conséquences radiologiques, en raison de son niveau d'activité élevé dans les jours qui suivent l'accident, de sa grande volatilité et de son aptitude à former des espèces gazeuses sous forme d'iode moléculaire ou d'iodure organique.

L'ensemble de ces phénomènes physiques, depuis l'événement initiateur jusqu'aux rejets radiologiques dans l'environnement, sont décrits et simulés dans les codes intégrés, dits « codes scénarios », développés par les organismes de sûreté et utilisés, en particulier, dans le cadre des études probabilistes de sûreté de niveau 2 (EPS2). Parmi ceux-ci, le code ASTEC, développé conjointement par l'IRSN et la GRS (organisme allemand de sûreté nucléaire), est en voie de devenir le code européen de référence dans ce domaine. La validation de ces codes nécessite une confrontation avec les résultats de programmes expérimentaux réalisés à différentes échelles. Pour ce qui concerne plus particulièrement le comportement du combustible et le relâchement des PF, citons le programme analytique VERCORS, réalisé au CEA, et les essais globaux PHÉBUS-PF réalisés par l'IRSN dans le réacteur PHÉBUS du CEA.

Le programme analytique VERCORS

La particularité du programme VERCORS est son caractère très analytique : les essais sont réalisés en cellule de haute activité sur des échantillons réels de combustibles irradiés en REP (environ 20 g de combustible) et, pour la plupart d'entre eux, ré-irradiés quelques jours à basse puissance en réacteur expérimental (SILOE ou OSIRIS) pour reconstituer l'inventaire en PF de période courte, qui sont les plus pénalisants sur le plan radiologique. Ces échantillons sont chauffés dans un four inductif sous une atmosphère mixte de vapeur d'eau et d'hydrogène simulant les conditions d'un accident grave. Le relâchement des PF est mesuré en ligne, en particulier par spectrométrie gamma visant directement le combustible pendant la séquence accidentelle.



Vingt-cinq essais réalisés entre 1983 et 2002 ont permis d'établir une des bases de données les plus complètes au monde sur le relâchement des PF. Les paramètres explorés au cours de ces essais portent sur le niveau de température atteint (en deçà ou au-delà de la fusion du combustible), les conditions oxydo-réductrices du gaz environnant (jouant un rôle non négligeable sur le relâchement des PF, en particulier les semi-volatils), le taux de combustion, le type de combustible (généralement UO_2 et quelques essais avec du MOX) et sa géométrie initiale (combustible intact ou débris de combustible pour simuler la phase finale d'un accident grave).

La figure 66 illustre le comportement du combustible UO_2 à 2 300 °C sous atmosphère oxydante de vapeur d'eau :

- Dans le cas de l'essai Vercors 5 (fig. 66a), où l'on a observé des amorces de fusion au contact entre l' UO_2 et la gaine oxydée, cette dernière étant elle-même déjà rompue en plusieurs endroits, suite à sa perte de ductilité et aux contraintes exercées par le gonflement du combustible ; le liseré foncé en périphérie du combustible correspond à une zone constituée de larges porosités ouvertes qui s'est vidée de la majorité de ses PF, y compris certains semi-volatils comme le baryum ;
- dans le cas de l'essai Vercors RT1 (fig. 66b, combustible à taux de combustion plus élevé), où le mélange $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ a entièrement fondu et occupe toute la partie interne du creuset support en thorie.

Concernant le relâchement des PF, la figure 67 illustre les différentes classes de volatilité qui ont été établies par ce programme :

- Les PF volatils, représentés ici par le Cs 137, dont le relâchement est quasi complet ;
- les PF semi-volatils, représentés ici par le Ba 140, dont le relâchement est très dépendant des conditions oxydo-réduc-

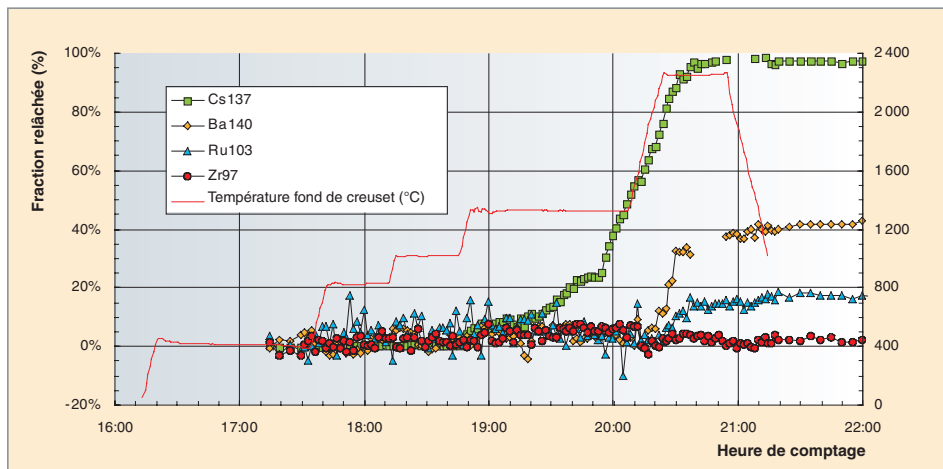


Fig. 67. Illustration des différences de volatilité entre les divers produits de fission (essais VERCORS).

trices et des diverses interactions entre les matériaux en présence ;

- les PF peu volatils, représentés ici par le Ru 103, dont le relâchement est faible mais significatif, et dont la rétention est presque totale dans les zones chaudes du circuit primaire (dont le haut de la cuve) ;
- les PF non volatils, représentés ici par le Zr 97, dont le relâchement est négligeable.

Les essais globaux PHÉBUS-PF

L'installation PHÉBUS PF a une vocation de représentativité globale d'un accident grave et constitue un complément aux expériences analytiques précédemment décrites. Situé au cœur du réacteur Phébus, source de neutrons destinée au chauffage du combustible d'essai, le dispositif expérimental est constitué de trois parties : la section en pile, un circuit hors cœur simulant le circuit primaire jusqu'à la brèche et un réservoir simulant l'enceinte de confinement du bâtiment réacteur. Le facteur d'échelle global est d'environ 1/5 000 par rapport à un réacteur REP 900 MWe.

- La section en pile, disposée au centre du réacteur, est constituée d'une grappe de 20 crayons combustibles et d'un crayon absorbant d'AIC ou de B4C situé au centre de la grappe. Deux grilles en zircaloy maintiennent en place les crayons, dont la hauteur est de un mètre environ ;
- les PF et aérosols de structure qui s'échappent de la grappe sont transportés par le débit de gaz (vapeur d'eau et hydrogène) dans une ligne verticale, puis horizontale, maintenue à 700 °C, jusqu'à un circuit représentatif des éléments principaux du circuit primaire d'un REP, en particulier une épingle de générateur de vapeur ;

- Le circuit débouche dans un réservoir cylindrique de 10 m³ simulant l'enceinte de confinement d'un REP. Ses parois sont chauffées de manière à éviter toute condensation de vapeur et à minimiser les dépôts d'aérosols. Trois condenseurs cylindriques, partiellement peints, simulent les surfaces d'une enceinte de REP et contrôlent le taux de condensation et le degré d'humidité. Un puisard, situé en partie basse et contenant de l'eau à PH contrôlé, collecte les condensats et les aérosols.

L'ensemble du programme expérimental est composé de 5 essais réalisés entre 1993 et 2004.

- FPT0 (combustible frais) et FPT1 (combustible à 23 GWj/tU) sous atmosphère riche en vapeur d'eau, crayon absorbant AIC et eau du puisard acide ;
- FPT2 (combustible à 23 GWj/tU) avec une phase gazeuse appauvrie en vapeur d'eau, crayon absorbant AIC et eau du puisard basique ;
- FPT4 avec un combustible irradié présent sous la forme d'un lit de débris (UO₂-ZrO₂) pour simuler la phase finale d'un accident grave (absence des parties simulant le circuit primaire et l'enceinte) ;
- FPT3 a été réalisé à l'automne 2004 dans des conditions similaires à celles de FPT2, mais avec un crayon absorbant en B₄C et un puisard acide évaporant, conditions favorables à un accroissement significatif d'iode gazeux dans la phase atmosphérique de l'enceinte (absence de piégeage de l'iode par l'argent dans l'eau du puisard et formation potentiellement plus élevée d'iodure organique par les produits de décomposition du B₄C).

Ces essais ont fourni des données expérimentales d'intérêt capital dans le domaine de la dégradation du combustible et du comportement des PF, permettant, en particulier, de comprendre le couplage entre les différents phénomènes physiques mis en jeu lors d'un accident grave (couplage généralement absent, lors d'essais analytiques). Parmi les grands enseignements que ce programme a mis en évidence, citons, en particulier :

- Une température de délocalisation du combustible 400 °C à 500 °C plus basse que la température de fusion de l'oxyde d'uranium, en raison des diverses interactions avec les matériaux de structure et, en particulier, la gaine du combustible,

ainsi que la présence des PF au sein de la matrice combustible ;

- un relâchement des PF en assez bon accord avec les résultats des essais analytiques, sauf pour certains PF semi-volatils, baryum en particulier, en raison du couplage fort entre dégradation du combustible et relâchement de ces PF ;
- la complexité du comportement de l'iode dans le circuit primaire et dans l'enceinte. Il y a encore de fortes incertitudes concernant les diverses formes chimiques de cet élément, en particulier celles qui sont gazeuses : la partition entre l'iode moléculaire, retenu par les systèmes de filtration de l'enceinte, et l'iode organique, non retenu par les systèmes de filtration, reste mal connue.

La maîtrise des accidents graves du réacteur EPR

Le réacteur EPR (à l'origine *European Pressurized Water Reactor*, maintenant *Evolutionary Power Reactor*) a été conçu pour prendre le relais des réacteurs nucléaires de deuxième génération, actuellement en exploitation en Europe et dans le monde. Il bénéficie de dispositions de sûreté innovantes, notamment à l'égard des accidents avec fusion du cœur.

En terme de **prévention**, tout d'abord, la probabilité d'occurrence d'un tel accident a été réduite d'un facteur dix par rapport à celle, déjà très faible, des REP actuels, cela grâce à la redondance accrue des systèmes de sûreté et, en particulier, la présence de quatre trains indépendants des principaux systèmes de sauvegarde, dont deux trains renforcés aux agressions externes.

Les **conséquences pour l'homme et l'environnement** ont, par ailleurs, été fortement diminuées (abaissement du terme source d'un facteur 100 pour le césium et 1 000 pour l'iode, par rapport aux réacteurs REP actuels), grâce notamment à la mise en œuvre des dispositifs suivants :

- Un récupérateur de corium, situé sous la cuve à l'intérieur de l'enceinte, assurant la rétention de tous les produits de fission solides ainsi que la décroissance à long terme de la puissance résiduelle. De ce fait, le risque de percement du radier, pris en compte sur les REP actuels, est exclu dans l'EPR ;
- des recombineurs autocatalytiques d'hydrogène, destinés à maintenir intègre l'enceinte de confinement en toutes circonstances. De ce fait, la procédure d'urgence U5 (décompression de l'enceinte avec rejets filtrés par bacs à lit sable) n'est pas nécessaire ;
- des filtres à iode de haute efficacité, pouvant piéger 99,9 % de l'iode moléculaire (même valeur que pour les aérosols) et 99 % de l'iode organique.

► Références

- [1] H. BAILLY, D. MÉNESSIER et C. PRUNIER, « *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides* », Éditions Eyrolles.
- [2] J. LIBMANN, « *Approche et analyse de la sûreté des réacteurs à eau sous pression* », INSTN/CEA collection enseignement.
- [3] H.J. ALLELEIN *et al.*, « *European validation of ASTEC-V1 through the EVITA project* » Eurosafe 26 novembre 2003, Paris.
- [4] G. DUCROS *et al.*, « *Fission product release and fuel behaviour under severe accidental conditions: synthesis of the Vercors 1-6 results* », Nuclear Eng. and Design 208.
- [5] S. BOURDON *et al.*, « *Résultats des deux premiers essais Phébus PF, FPT0 et FPT1* », Rapport scientifique et technique de l'IRSN 2002.
- [6] B. CLÉMENT *et al.*, « *LWR severe accident simulation: synthesis of the results and interpretation of the first Phebus FP experiment FPT0* », Nuclear Eng. and Design 226.
- [7] B. CLÉMENT, « *Summary of the Phebus-FP interpretation status* », 5th technical seminar on the Phébus-FP programme, Aix-en-Provence, June 2003.

Gérard DUCROS,
Département d'étude des combustibles

La gestion du combustible dans les cœurs de réacteurs

Pour le réacteur, le combustible nucléaire constitue la réserve de ressources neutronique et énergétique qui évolue au cours du temps et selon les conditions d'exploitation. D'une part, cette réserve s'appauvrit par la fission des atomes **fissiles*** chargés et, d'autre part, elle se renouvelle par l'absorption de neutrons par des noyaux **fertiles***.

La gestion du combustible consiste donc à optimiser l'énergie extraite de ce combustible en respectant un ensemble de contraintes imposées par le fonctionnement ou la sûreté du réacteur nucléaire : contrôle de la réactivité ; souplesse d'exploitation ; optimisation des capacités de puissance de la chaudière ; minimisation des rejets et des déchets.

Le chargement retenu pour les cœurs de réacteur à eau ordinaire sous pression (REP) ou pour les réacteurs à eau bouillante (REB) consiste en une « gestion par lot » du combustible. Le cœur est ainsi fractionné en n lots (fractionnement n). À chaque arrêt du réacteur pour rechargement, le lot de combustible le plus irradié est évacué vers les piscines d'entreposage des combustibles irradiés et remplacé par un lot d'assemblage neuf appelé « recharge ». On appelle « **cycle d'irradiation*** » ou « campagne » la période de fonctionnement d'un réacteur entre deux chargements successifs. En France, la durée des cycles est de 12 et 18 mois ; aux États-Unis, certains cycles d'irradiation atteignent 24 mois. La longueur de campagne est également exprimée en **JEPP*** (Jour équivalent pleine puissance).

Le cœur du réacteur résulte de l'arrangement (correspondance entre un assemblage et son positionnement dans le cœur) de ces assemblages dans la cuve qui permet le maintien mécanique de l'ensemble et la circulation de l'eau de refroidissement.

La définition de l'arrangement dans le cœur des assemblages combustibles des différents lots nécessite l'étude du comportement du réacteur tout au long du cycle, afin de s'assurer que les paramètres de fonctionnement et de sûreté sont conformes à ceux définis par la conception de la chaudière et du combustible lui-même. Ces études nécessitent une très bonne modélisation de la physique des réacteurs ainsi que des mesures réalisées en fonctionnement dans le cœur et les circuits de refroidissement (ces aspects ne seront pas abordés ici).

Relations entre durée de cycle, irradiation maximale et fractionnement

Il est impératif de maintenir la **criticité*** dans le cœur du réacteur : or, la **réactivité*** décroît de manière régulière avec l'énergie produite (exprimée en MWj/t de métal lourd initial). La durée de cycle est imposée par cette condition de maintien de la criticité. À durée de cycle donnée, on peut associer un **taux d'irradiation*** moyen du cœur en fin de cycle ($BU_{m\text{-}f\text{dc}}$) défini par :

$$BU_{m\text{-}f\text{dc}} = n \text{ DBU}_c,$$

où DBU_c est le taux d'accroissement moyen du taux d'irradiation du cœur, lors d'un cycle, n est le fractionnement ; ces paramètres résultent d'un choix de gestion du combustible.

La durée de vie maximale de l'élément combustible s'exprime par une énergie maximale fournie par unité de masse de métal lourd (en MWj/t). Cette limite dépend à la fois de la conception du combustible et du mode opératoire du réacteur. Évidemment, la quantité d'énergie qu'on peut extraire d'un combustible dépend de la quantité de noyaux fissiles qu'il contient : le taux de combustion maximum de la recharge est d'autant plus grand que l'enrichissement initial du combustible est plus élevé.

La gestion d'un cœur de réacteur et de son combustible sera donc optimisée, en fonction des contraintes techniques ou économiques de l'exploitant, en jouant sur les trois paramètres :

- Durée de cycle d'irradiation ;
- fractionnement du cœur ;
- enrichissement initial du combustible.

Enrichissement et poisons consommables

Il y a, pour des raisons de neutronique, des relations qui lient l'enrichissement, le fractionnement et la durée de cycle (fig. 68).

Un fractionnement faible et/ou des campagnes longues conduisent à augmenter l'enrichissement et donc la réserve de réactivité à contrôler en début de cycle. Dans les REP, cette réactivité est maîtrisée au cours de l'irradiation en diluant, à la bonne quantité, du **bore*** (absorbant neutronique) sous

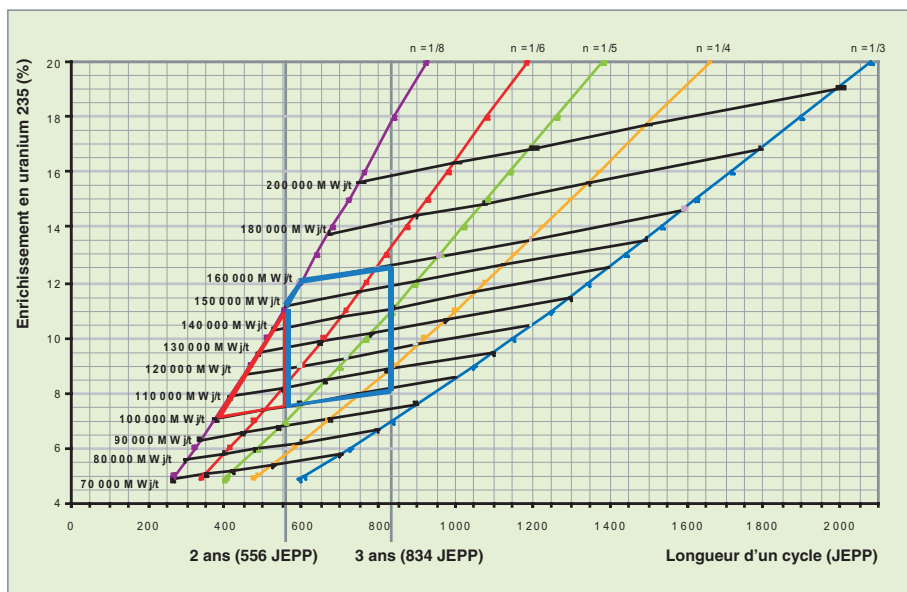


Fig. 68. Relation entre l'enrichissement, le taux de combustion, la longueur du cycle et le fractionnement du cœur pour des très hauts taux de combustion :

- Pour un fractionnement donné, la longueur possible pour un cycle croît avec l'enrichissement du combustible ;
- pour un taux de combustion donné, la longueur possible pour un cycle croît également avec l'enrichissement du combustible, mais selon une pente plus faible ;
- pour un fractionnement et une longueur de cycle imposés, l'enrichissement nécessaire et le taux de combustion atteint sont déduits de l'abaque.

forme d'acide borique dans l'eau du circuit primaire. La quantité de bore soluble introduite est limitée par le **coefficient de température*** du modérateur en début de vie qui doit être négatif pour des raisons de sûreté. Au-delà de cette limite, il convient, pour maîtriser la réactivité, d'utiliser un absorbant neutronique complémentaire : les **poisons consommables*** qui disparaissent par capture neutronique et dont l'efficacité diminue avec l'irradiation. Le poison consommable le plus employé est le gadolinium sous forme Gd_2O_3 ; il est mélangé avec l'uranium dans certaines pastilles de combustible ; des crayons de Pyrex contenant du B_2O_3 sont également utilisés dans les premiers cœurs de REP.

L'emploi du gadolinium en tant que poison consommable implique un équilibre entre les différents paramètres que sont la teneur en gadolinium, le nombre de crayons et d'assemblages « gadoliniés ». La teneur en gadolinium permet de définir la vitesse de disparition du poison et la pénalité résiduelle en fin d'irradiation ; le nombre d'assemblages « gadoliniés » de la recharge dimensionne l'antiréactivité reprise en début de cycle ; le nombre de crayons influe sur l'homogénéité de la distribution de puissance dans l'assemblage.

Ainsi, pour une gestion donnée (durée de cycle et fractionnement fixés), les grandeurs initiales à définir et à prendre en compte sont :

- L'enrichissement en uranium 235 (1,8 à 5 % pour les réacteurs à eau actuels) ;
- l'origine de l'uranium : uranium extrait de la mine ou uranium de retraitement (l'uranium de retraitement contient des isotopes pairs de l'uranium (232, 234, 236), qui absorbent les neutrons. La perte de réactivité du combustible due à ces isotopes doit être compensée par un enrichissement légèrement plus élevé) ;
- les poisons consommables : nombre d'assemblages « gadoliniés » de la recharge, nombre de crayons « gadoliniés » dans l'assemblage (0 à 20), la teneur en Gd_2O_3 (7 à 9 %) ;

- la teneur en plutonium et la composition isotopique de ce plutonium, dans le cas d'un combustible MOX.

La durée de cycle, l'irradiation maximum des assemblages, le fractionnement définissent l'enrichissement, par conséquent la valeur maximale de bore, puis, si nécessaire, l'empoisonnement en poisons consommables.

Influence de la nature du combustible et de son évolution sur les paramètres importants de la physique et de la gestion des cœurs

La nature du combustible mis en œuvre dans les réacteurs a un rôle clé sur certains paramètres de la physique des réacteurs :

La fraction de neutrons retardés* joue un rôle déterminant dans le contrôle de la réaction en chaîne ; elle varie de façon significative en fonction du combustible et de son état d'irradiation (il y a environ deux fois moins de neutrons retardés dans un combustible MOX que dans un combustible UO_2 neuf).

Le coefficient de réactivité* du cœur dépend des caractéristiques neutroniques des isotopes contenus dans le combustible. Pour des raisons de sûreté, le coefficient de vidange du cœur doit rester négatif, ce qui limite, de fait, la teneur en plutonium du combustible MOX dans les réacteurs à eau (fig. 69).

L'efficacité des absorbants tels que le bore soluble et les grappes de contrôle est réduite en présence de plutonium ;

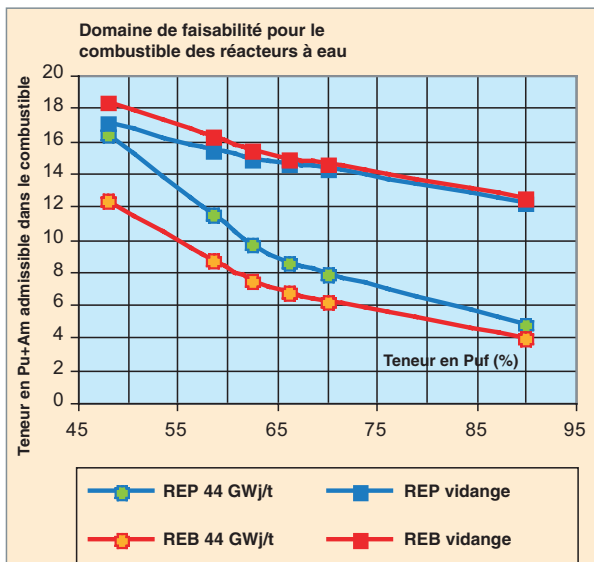


Fig. 69. Lors du recyclage du plutonium dans les REP et REB, la teneur en plutonium du combustible doit être maintenue entre des limites imposées par un taux de combustion minimal à atteindre et par un coefficient de vidange négatif. Ces limites varient en fonction de la qualité du plutonium utilisé, c'est-à-dire sa teneur en isotopes fissiles. Dans la pratique, on se limite à environ 12 % de Pu dans le MOX pour garder un peu de marge par rapport à ces limites.

ainsi pour les gestions impliquant du combustible MOX, il a été nécessaire d'introduire 4 grappes supplémentaires pour respecter les critères de sûreté liés à l'antiréactivité des absorbants.

La durée de vie des cuves dépend directement de la **fluence*** en flux rapide reçue par la cuve ; cette fluence provient des neutrons issus des fissions produites dans les rangées de crayons situées en périphérie du cœur. La figure 70 présente une image issue d'une simulation réalisée avec le code neutronique Monte Carlo TRIPOLI 4. Pour réduire le flux de neutrons rapides en périphérie, il est nécessaire de placer les assemblages les plus irradiés face aux zones les plus exposées et de placer les assemblages MOX plus à l'intérieur du cœur. Cette stratégie permet également de diminuer les fuites neutroniques hors cœur et contribue à l'allongement de la campagne d'irradiation.

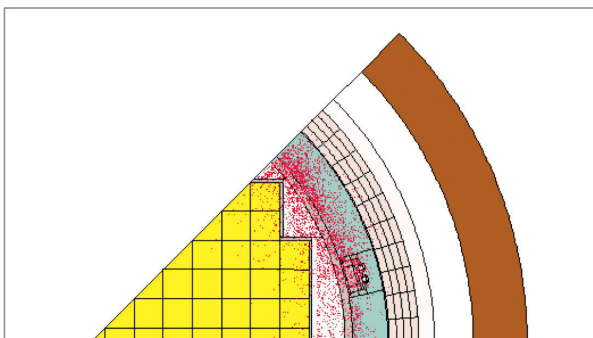


Fig. 70. Fluence cuve, le maillage pour la modélisation du transport des neutrons par le code TRIPOLI 4.

Distribution de puissance

La manière d'arranger les assemblages combustibles dans le cœur influe fortement sur la distribution de puissance ; la limitation de la puissance maximale produite par un crayon permet de garantir le bon comportement du cœur en situation de perte de réfrigérant.

Le recyclage du plutonium avec les assemblages MOX a conduit à définir des zones de teneur plus faible en périphérie d'assemblage, sans quoi la puissance des crayons MOX serait trop élevée. Les figures 71 et 72 présentent la distribution de puissance et le flux de neutrons thermiques dans un réacteur recyclant du plutonium.

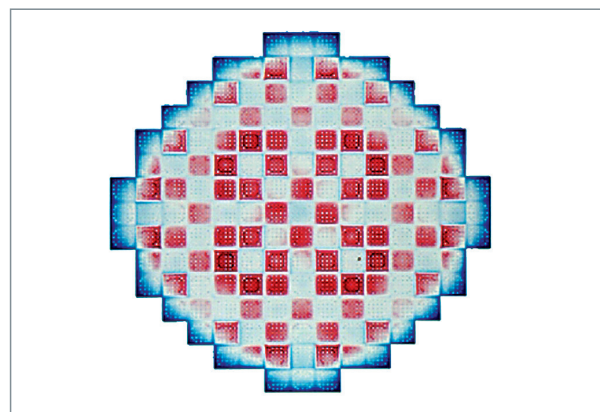


Fig. 71. Distribution de puissance calculée pour un réacteur recyclant du plutonium.

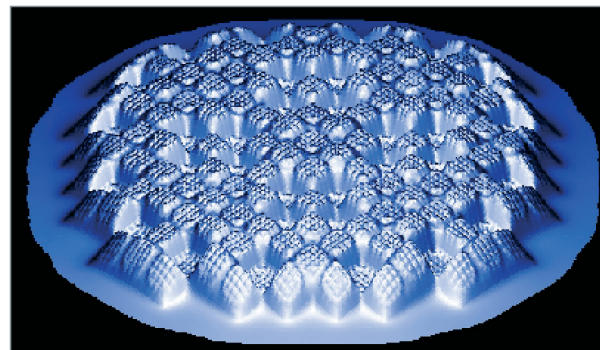


Fig. 72. Distribution du flux des neutrons thermiques dans un cœur chargé avec des assemblages MOX.

Perspectives d'évolution dans la gestion des cœurs

Les exploitants cherchent à optimiser les performances du combustible et de la gestion des cœurs, afin :

- D'augmenter la disponibilité du parc ;
- d'assurer une plus grande fiabilité et une souplesse d'exploitation accrue ;
- d'économiser la matière première, en tirant un maximum d'énergie de l'uranium naturel.

tout en maintenant (voire en améliorant) le niveau de sûreté.

Au niveau d'un parc de réacteurs, la recherche d'une optimisation globale comprend plusieurs niveaux :

- La répartition des arrêts de tranche en fonction des demandes prévisionnelles saisonnières ;
- la flexibilité dans la durée des campagnes : il est important de pouvoir anticiper les durées de campagne pour adapter la capacité à la demande et répondre aux aléas d'exploitation du parc, sur des échelles de temps de l'ordre de la journée ou de la semaine ;
- la souplesse d'exploitation du réacteur, pour répondre au suivi du réseau sur des échelles de temps de l'ordre de la minute, et améliorer en fin de campagne les possibilités de fonctionnement à puissance réduite.

D'autres aspects, selon les situations, peuvent avoir plus ou moins d'importance. La réduction du nombre d'assemblages utilisés par MWe produits peut être une motivation pour définir une gestion. La gestion du combustible a un impact fort sur l'encombrement des piscines d'entreposage d'assemblages de combustibles irradiés et sur les transports de combustibles neufs et irradiés, par exemple.

La composition isotopique au déchargement du combustible, notamment la quantité et la qualité du plutonium, résulte d'un choix de gestion qui a des conséquences sur les opérations de l'aval du cycle du combustible, notamment sur le traitement des combustibles usés et sur le recyclage du plutonium en REP.

Aujourd'hui, les recherches sont orientées par des programmes visant à allonger les campagnes et la durée d'irradiation des assemblages combustibles : en France, on est passé d'un taux de combustion de 33 GWj/t en gestion par tiers de cœur dans les années 80, à 52 GWj/t en gestion par quart de cœur, aujourd'hui. Le tableau ci-dessous présente la situation actuelle.

Combustible et économie

La gestion du combustible dans le cœur du réacteur n'est qu'un élément parmi d'autres dans la question plus générale de l'optimisation du cycle du combustible.

Il est vrai que le combustible n'intervient pas de façon prépondérante dans le coût du MWh : seulement 4,3 €/MWh, en incluant toutes les opérations du cycle du combustible, depuis la mine jusqu'au déchet. Cependant, à l'échelle d'un parc de réacteurs, tout progrès sur la gestion du combustible peut se chiffrer rapidement en milliards d'euros par an, ce qui justifie une recherche active.

Les éléments à prendre en compte pour une optimisation technico-économique du combustible sont le coût de la matière première, le coût de l'enrichissement, le coût de fabrication d'un élément combustible, le coût de fonctionnement du réacteur (qui dépend de la longueur des cycles d'irradiation), le coût du traitement-recyclage et de la gestion des déchets. Tous ces éléments interviennent de façon compliquée et bouclée dans l'optimisation technico-économique du combustible et de sa gestion. Par exemple, si l'on veut gagner à la fois sur le coût de fabrication des éléments combustibles nécessaires à la production d'un MWh et sur le coût de fonctionnement, on sera amené à augmenter le taux de combustion et à allonger la durée des cycles d'irradiation. Ce faisant, l'uranium du crayon sera certes mieux utilisé, mais il devra également être plus enrichi...et il aura fallu plus d'uranium naturel pour produire

Les principales études menées par EDF (tableau ci-contre) touchent toutes les tranches du parc français :

- REP900 : gestion parité MOX démarrée en 2007, dont l'objectif est d'atteindre l'équivalence en taux de combustion des combustibles UOX et MOX (taux de combustion maximal de l'assemblage combustible : 52 GWj/t)
- REP1300 gestion GALICE : 60GWj/t vers 2008 et 70 GWj/t vers 2015 avec les enrichissements correspondants de 4,5 et 4,95 %, avec amélioration de la flexibilité +/- 2000 MWj/t pour la durée de cycle
- REP 1450 gestion ALCADÉ : vers 2008, allongement des cycles de 11 à 18 mois

Gestions actuelles des tranches du parc EDF

Réacteurs	Nombre d'assemblages	Nombre de tranches	Combustible	Fractionnement	Longueurs des campagnes	Gestion
900 MWe	157	20	UOX 3,7 % MOX 7,1 %	1/4 1/3	12 mois, 45 GWj/t 12 mois, 37 GWj/t	GARANCE
900 MWe	157	8 dont 2 avec URE	UOX 3,7 %	1/4	12 mois 48 GWj/t	
900 MWe	157	6	UOX 4,2 %	1/3	18 mois, 52 GWj/t	CYCLADE
1 300 MWe	193	20	UOX 4 %	1/3	18 mois , 47 GWj/t	GEMMES
1 450 MWe	193	4	UOX 3,4 %	1/4	11 mois, 42 GWj/t	

ledit crayon. Au final, seul un calcul détaillé permettra de dire si on a gagné en termes de consommation de matière première et de travail de séparation.

L'optimisation technico-économique ci-dessus est une optimisation sous contrainte, car on a vu qu'il existait des limitations technologiques à l'utilisation du combustible : l'épuisement des noyaux fissiles et l'empoisonnement par les produits de fission imposent des limites neutroniques au taux de combustion maximal admissible pour un combustible donné. Par ailleurs, la tenue du combustible en réacteur n'est pas illimitée, du fait de l'irradiation et de la tenue de la gaine à la corrosion. Il faut arrêter l'irradiation d'un assemblage combustible avant que des situations accidentelles potentielles ne risquent de compromettre la tenue de la gaine. En pratique, on règle les paramètres caractérisant le combustible de telle sorte qu'il n'y ait pas un seul facteur limitant, mais plusieurs, imposant leur limitation de façon concomitante : par exemple, il est inutile d'enrichir l'uranium d'un crayon à 6 % pour le rendre neutroniquement apte à subir un taux de combustion de 80 GWj/t, si la gaine de ce crayon ne résiste pas à plus de 60 GWj/t, du fait de la corrosion.

Toutes les évaluations technico économiques de la gestion du combustible [1] montrent qu'il est avantageux d'augmenter le taux de combustion au moins jusqu'à 60 GWj/t, en augmentant du même coup l'enrichissement, la densité de puissance

et la durée des cycles d'irradiation. Au-delà de 60 GWj/t, il semble qu'on ne gagne plus grand-chose au plan économique (fig. 73), mais l'évaluation du coût dépend de nombreux paramètres, en particulier des taux d'intérêt et du mode de gestion des combustibles usés, si bien qu'il faut étudier la situation de chaque pays, voire de chaque réacteur, au cas par cas.

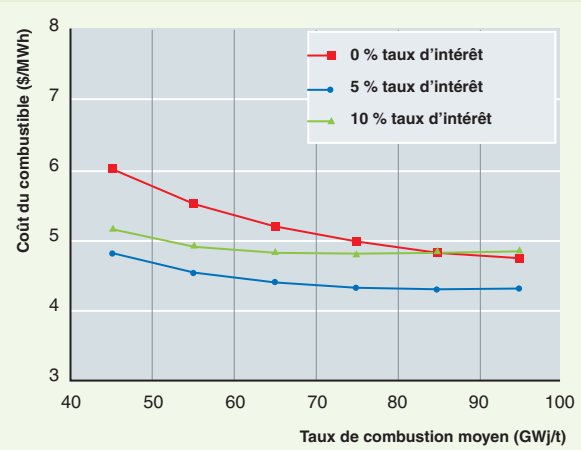


Fig. 73. Le coût du combustible en fonction du taux de combustion, évalué par l'OCDE/AEN [1]. Ce coût dépend beaucoup des hypothèses retenues. Pour plus de détails, se reporter à la référence [1].

Gestions étudiées pour les tranches actuelles d'EDF

Réacteurs	Nombre d'assemblages	Nombre de tranches	Combustible	Fractionnement	Longueurs des campagnes	Gestion
900 MWe	157	20	UOX 3,7%	1/4	12 mois, 48 GWj/t	Parité MOX
			MOX 8,6 %	1/4	12 mois, 48 GWj/t	
1 300 MWe	193	20	UOX 4,5%	1/3 - 1/4	18 mois, 55 GWj/t	GALICE
1 450 MWe	193	4	UOX	1/3	17 mois, 47 GWj/t	ALCADE

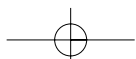
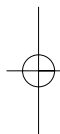
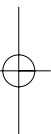
Les modes de gestion du combustible envisagés pour le futur amènent à faire fonctionner le combustible dans des conditions plus dures. Cela est rendu possible par les progrès réalisés sur les céramiques combustibles, et, surtout, sur les matériaux de gainage. Le CEA participe à l'évolution de ces gestions en réalisant des programmes de R&D sur le combustible destinés à proposer, à conforter et à valider les options techniques pour les combustibles à performances accrues.

► **Références**

[1] « *Very High Burn-ups in Light Water Reactors* », publication OCDE 2006, AEN N° 6224.

Richard LENAIN,

Département de modélisation des systèmes et des structures



Des bilans de matière pour le cycle du combustible

Deux familles de combustibles sont utilisées dans les réacteurs à eau en service dans le parc électronucléaire français : l'**UOX*** à base d'uranium naturel enrichi et le **MOX*** à base de plutonium sur support uranium appauvri. L'enrichissement initial en U 235 dans l'uranium enrichi des combustibles UOX et la teneur initiale en plutonium des combustibles MOX dépendent du **taux de combustion*** (TC) visé et de la gestion du combustible dans le réacteur ; pour le MOX, la teneur initiale en plutonium dépend aussi de la composition isotopique du plutonium utilisé.

Sous l'effet de réactions nucléaires induites par les neutrons et de la radioactivité, tout élément présent dans un combustible (matières nucléaires, impuretés, éléments des structures de l'assemblage) subit en réacteur des transformations nucléaires qui modifient le bilan matière, au cours de la vie du combustible. Cette évolution du combustible, au cours de l'irradiation, est prise en compte dans les études de gestion des cœurs.

La connaissance de l'évolution du combustible après irradiation est un élément majeur pour les opérations de l'aval du cycle, les transports et la gestion des déchets. L'objectif des études du cycle est de déterminer les bilans de matière en fonction du temps, afin d'orienter la politique de recyclage, d'entreposage et de gestion des déchets à long terme.

Évolution des matières dans le cœur

Les principales réactions nucléaires provoquées par les neutrons (n, x) et les différents types de désintégration radioactives (α , β^- , β^+) sont illustrés sur les figures 74, 75 et 76 ci-dessous et appliqués à un radionucléide de masse atomique A et de numéro atomique Z (par exemple : A = 235 et Z = 92 pour l'U 235) : les fissions (n,f) sur les **isotopes*** fissiles sont à l'origine de la formation des **produits de fission***.

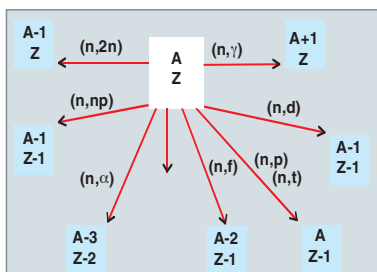


Fig. 74. Les principales réactions nucléaires induites par des neutrons sur un noyau de masse A et de numéro atomique Z.

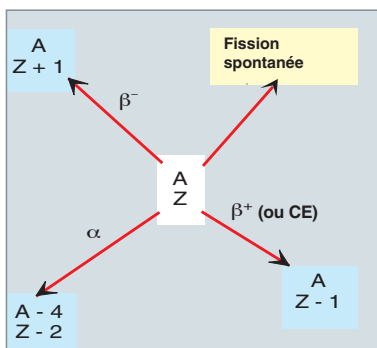


Fig. 75. Les principaux types de désintégration radioactive susceptibles d'affecter un noyau.

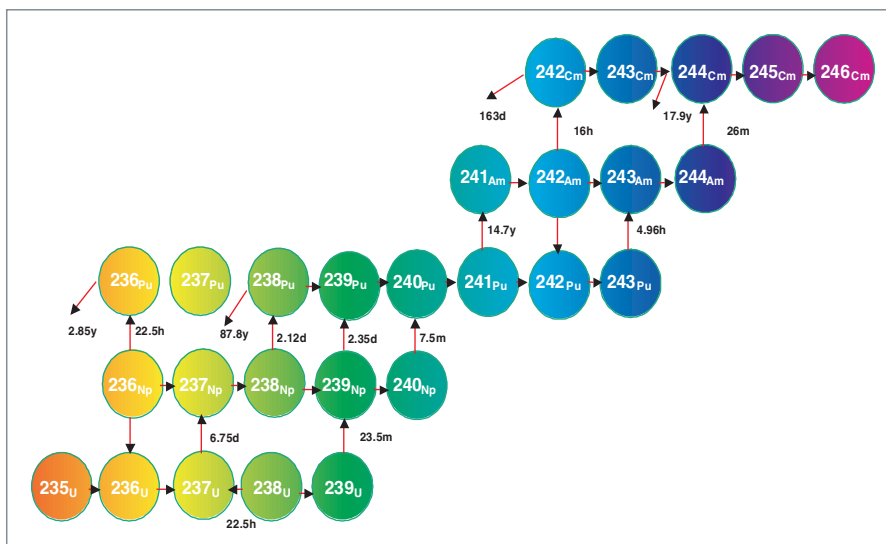


Fig. 76. La chaîne de filiation des actinides susceptibles de se former dans le cœur d'un réacteur.

L'évolution de la population de chaque radionucléide est régie par une équation différentielle dont la forme générale est la suivante (N : concentration, σ : section efficace, λ : Log 2 / période, γ : rendements de fission) :

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \sigma_{k \rightarrow i} N_k(t)\phi + \lambda_{j \rightarrow i} N_j(t) - [\lambda_i N_i(t) + \sigma_i N_i(t)\phi] + \gamma_i \sigma_j \phi$$

La résolution du système différentiel des équations d'évolution régissant tous les radionucléides d'intérêt permet de calculer les bilans matière du combustible ; le nombre de radionucléides à traiter dépend de la grandeur physique à calculer ; il est compris entre quelques dizaines pour les paramètres neutroniques dans le cœur à quelques milliers pour la puissance résiduelle du cœur, juste après l'arrêt du réacteur.

Les figures 77 et 78 ci-dessous donnent, pour un combustible UOX :

- L'évolution de la composition isotopique du plutonium formé dans le combustible, enrichi à 4 % en U 235, en fonction du taux de combustion ; on notera que l'inventaire en réacteur du Pu 239 se stabilise vers 40 000 MWj/t ;
- la formation des actinides et des produits de fission ; en fin d'irradiation, le combustible contient environ 1% de plutonium, 0,1% d'actinides mineurs et 4% de produits de fission.

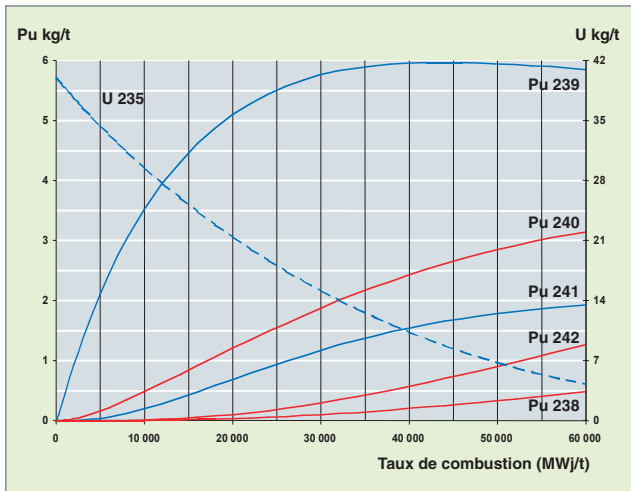


Fig. 77. La quantité d'isotopes du plutonium qui se forment dans le cœur d'un réacteur dépend du taux de combustion.

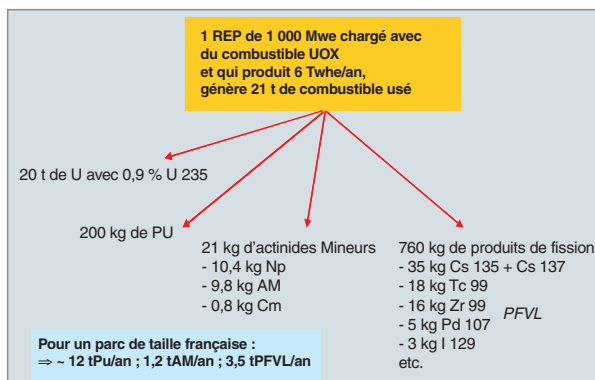


Fig. 78. Quantités d'actinides et de produits de fission formés lors de l'irradiation de combustible UOX dans un réacteur à eau.

Le tableau suivant fournit les productions et les consommations des actinides pour une même énergie électrique produite dans les deux types de combustible UOX et MOX ainsi que l'isotopie du plutonium et la teneur en Pu fissile (Pu 239 + Pu 241) qui caractérise la qualité du plutonium pour une réutilisation sous forme de combustible MOX. Cette qualité du plutonium se dégrade avec le temps de refroidissement en créant de l'Am 241 par désintégration du Pu 241, comme le montre la figure 79.

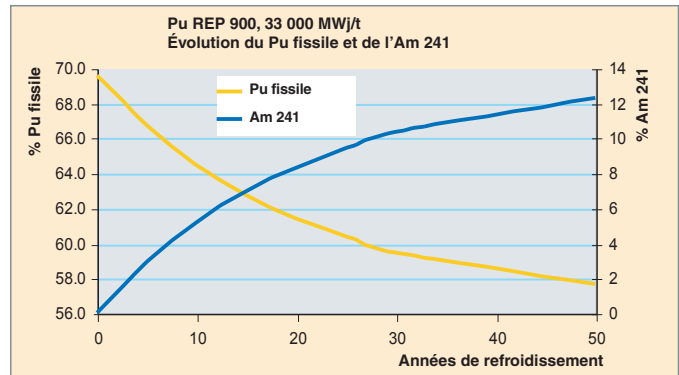


Fig. 79. La production d'américium 241 par désintégration de plutonium 241 contribue à dégrader la qualité isotopique du plutonium formé en réacteur, c'est-à-dire la proportion d'isotopes fissiles qu'il contient.

Bilan après cinq ans de refroidissement	UOX 55 GWj/t	MOX 55 GWj/t
Pu (kg/Twhé)	+ 26	- 53
Np (kg/Twhé)	+ 1,8	-
Am (kg/Twhé)	+ 1,5	+ 15
Cm (kg/Twhé)	+0,3	+ 4
Pu 238 (%)	3,5	5,1
Pu 239 (%)	51,0	41,5
Pu 240 (%)	24,8	29,0
Pu 241 (%)	12,1	12,8
Pu 242 (%)	8,6	11,6
Pu fissile (%)	62,1	54,3

Ce tableau montre qu'un recyclage du plutonium sous forme de MOX permet de réduire l'inventaire en plutonium (un réacteur chargé à 30 % MOX et 70 % UOX présente un bilan net en plutonium voisin de zéro). En termes de gestion des ressources, l'utilisation sous forme de MOX de tout le plutonium produit par le parc français de réacteurs nucléaires permettrait d'économiser chaque année de l'ordre de 900 tonnes d'uranium naturel, soit ~15% de la consommation annuelle.

En revanche, l'utilisation du plutonium conduit à une augmentation d'un facteur 10 environ des actinides mineurs (Am et Cm) dans le combustible irradié.

Puissance résiduelle et radiotoxicité potentielle

La majorité des radionucléides (actinides et produits de fission principalement) formés sous irradiation sont radioactifs avec des périodes (temps au bout duquel la concentration a diminué de moitié) pouvant aller de quelques secondes à plusieurs millions d'années ; la désintégration de ces radionucléides s'accompagne d'émission de rayonnements α , β , γ et neutrons dont il faut se protéger au cours des opérations de maintenance, de transport, d'entreposage et de stockage des matières, et qui sont à l'origine de la chaleur résiduelle à évacuer.

Les courbes ci-après (fig. 80 à 83) donnent l'évolution de la puissance résiduelle des combustibles UOX et MOX ainsi que la contribution des éléments à la puissance résiduelle et à la radio toxicité* du combustible MOX.

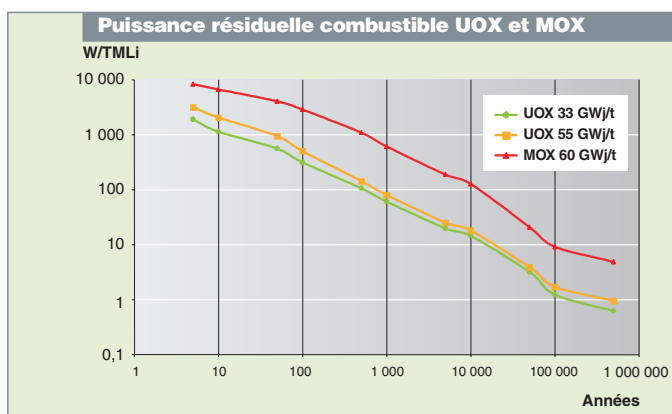


Fig. 80. La puissance résiduelle dégagée par le combustible utilisé (ici exprimée en Watts par tonne de métal lourd initial) décroît en fonction du temps. Cette puissance étant due à la décroissance des radionucléides contenus dans le combustible, celle-ci dépend de la quantité d'actinides et de produits de fission formés, et donc du taux de combustion ; elle est nettement plus élevée pour un combustible MOX que pour un combustible UOX.

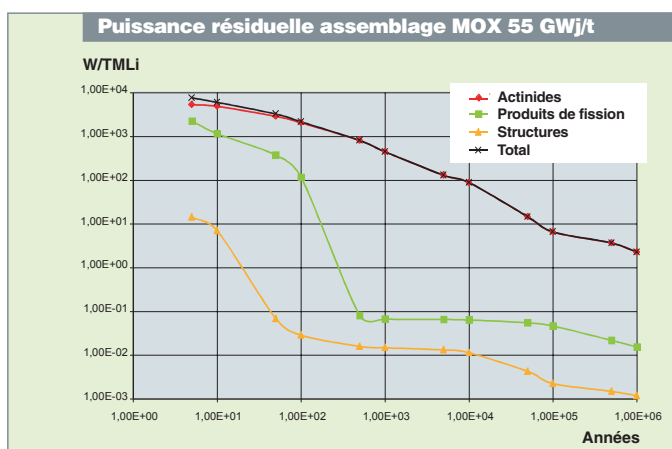


Fig. 81. La puissance résiduelle dégagée par un assemblage MOX utilisé est dominée par la contribution des actinides.

Au-delà de cinq ans de refroidissement, la puissance résiduelle d'un combustible MOX est supérieure à celle d'un combustible UOX pour un taux de combustion équivalent.

Après 200 ans de refroidissement, la puissance résiduelle d'un combustible est due majoritairement aux actinides ; il en est de même pour la radiotoxicité. Après 200 ans et avant 100 000 ans de refroidissement, les éléments contribuant majoritairement à la thermique et à l'inventaire radio toxique d'un combustible utilisé sont : Pu > Am > Cm. Pour fixer les idées, la radiotoxicité d'un combustible utilisé à long terme est due à 90 % au Pu, à 10% à l'Am et à 1% au Cm (fig. 82 et 83).

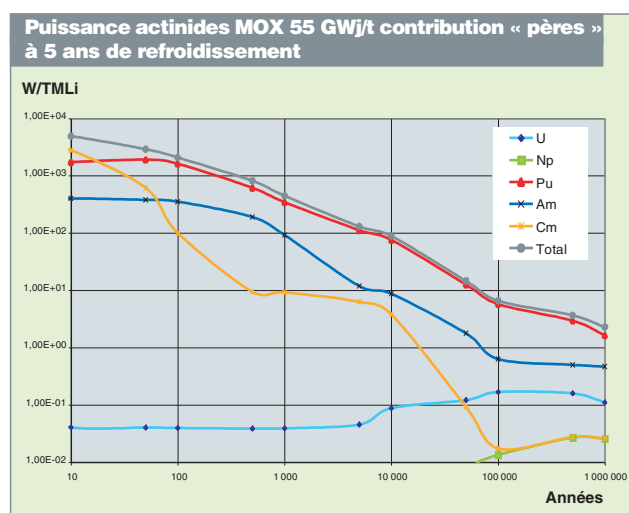


Fig. 82 La contribution des différents actinides à la puissance résiduelle d'un combustible MOX utilisé, irradié à 55 GWj/t et laissé à refroidir pendant cinq ans.

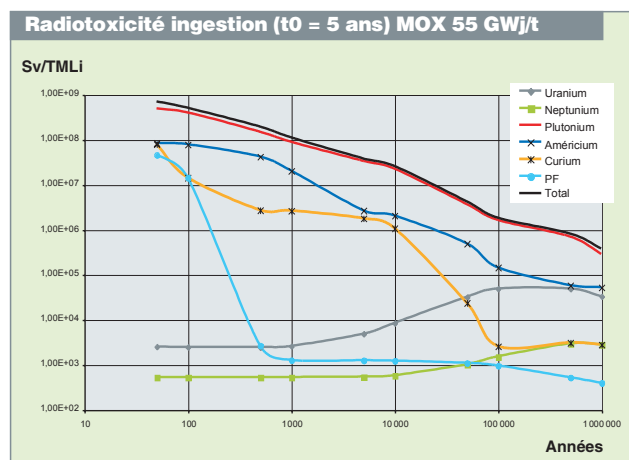


Fig. 83. La radiotoxicité potentielle d'un combustible MOX utilisé, en fonction du temps.

Lors des opérations de traitement du combustible utilisé, le plutonium est récupéré pour réutilisation et les actinides mineurs sont conditionnés avec les produits de fission dans une matrice de verre. Des programmes de R&D sont en cours pour récupérer à terme ces actinides, lors du traitement en vue de leur transmutation dans des réacteurs dédiés.

Gestion du plutonium

Nous avons vu que l'utilisation du plutonium permettait d'économiser les ressources en Unat et de réduire la radiotoxicité potentielle du combustible utilisé. Des études de scénarios de parc électronucléaires réalisées au CEA ont montré que, par rapport au cycle ouvert (voir figure 84) :

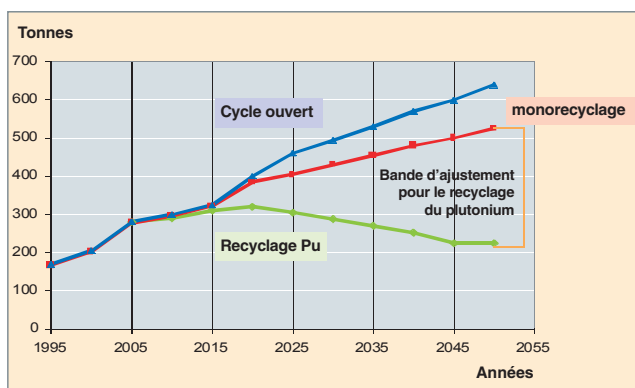


Fig. 84. La quantité totale de plutonium produite par le parc nucléaire français, selon le mode de gestion du combustible.

- Un recyclage du plutonium (monorecyclage) en REP permettrait de réduire l'inventaire en plutonium total ;
- le recyclage multiple du plutonium (stratégie non retenue à ce jour) pourrait conduire à stabiliser, voire réduire, l'inventaire en plutonium total ;
- le recyclage du plutonium conduisait à une réduction de la radiotoxicité potentielle à long terme ;
- Comme nous le voyons sur la figure 85, retirer les actinides mineurs des colis de déchets vitrifiés permettrait une réduction supplémentaire de la radiotoxicité. La transmutation de ces actinides mineurs serait optionnellement envisageable dans les réacteurs à neutrons rapides de quatrième génération.

Jean-Paul GROUILLER,

Département d'étude des réacteurs

et Marc DELPECH,

Direction du développement et de l'innovation nucléaire

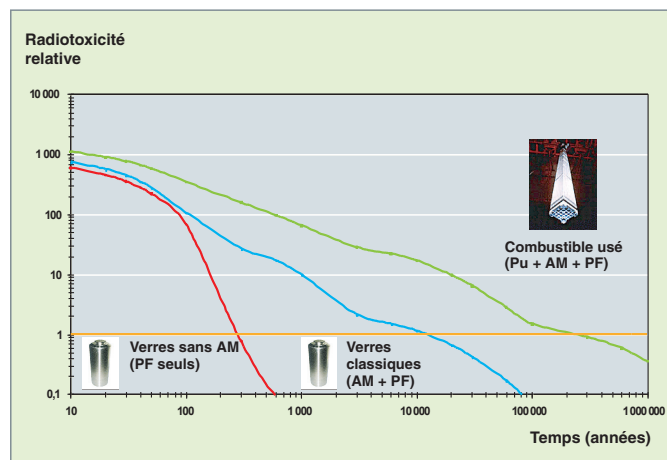


Fig. 85. La décroissance de la radiotoxicité relative du combustible utilisé et des déchets vitrifiés en fonction du temps. La radiotoxicité est estimée ici par rapport à celle de l'uranium initial (ligne orange).

Le traitement-recyclage du plutonium déjà pratiqué en France réduit déjà beaucoup la radiotoxicité relative ; Retirer les actinides mineurs des colis de déchets vitrifiés permettrait une réduction supplémentaire de la radiotoxicité des déchets.

Le comportement à long terme du combustible usé

Après sa sortie de réacteur, l'assemblage combustible usé passe par une période d'**entreposage***. En France, cette période d'entreposage précède des opérations de retraitement du combustible. Un entreposage de longue durée est envisagé comme une option possible, susceptible d'apporter de la souplesse dans la stratégie de gestion du combustible nucléaire usé. La durée de cet entreposage est un paramètre important dans cette stratégie. Or, envisager d'entreposer le combustible nucléaire usé requiert de comprendre et de prédire la manière dont le combustible est susceptible d'évoluer sur des durées séculaires en entreposage de longue durée, voire sur des durées multimillénaire, au cas hypothétique où l'option du **stockage*** géologique profond du combustible usé serait retenue.

Le crayon combustible est conçu pour confiner la matière nucléaire combustible et les produits des réactions nucléaires pendant le séjour du combustible en réacteur. Or, la matrice UO_2 et la gaine se dégradent durant l'irradiation, et il convient de vérifier que le confinement sera assuré également après sa sortie du réacteur.

Nature du combustible nucléaire usé

Lors de son évolution en réacteur, le combustible subit des transformations physico-chimiques liées aux fortes températures et aux réactions de fissions. Ces transformations sont importantes à considérer, dans la mesure où elles déterminent l'état physico-chimique de référence pour l'évolution à long terme du combustible usé.

Les transformations les plus importantes à retenir sont :

- La fracturation radiale de la pastille liée à l'existence d'un gradient de température entre le cœur et la périphérie des pastilles. On distingue ainsi, couramment, 5 à 7 fractures majeures séparant la pastille en une quinzaine de fragments (fig. 86) ;
- la création de nouveaux atomes dans le matériau du fait de la réaction de fission. Ceux-ci se retrouvent soit sous forme de précipités solides métalliques (Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In ...), soit d'oxydes (Rb, Ba, Cs, Te ...) ou insérés (sous forme soluble) dans la matrice (anthanides, Sr, Zr, Nb, Y...). Parmi ces produits de fission, il convient de noter le cas particulier des gaz de fission (Xe, Kr) dont une partie est relâ-

chée dans les espaces vides du crayon (~2-5 %), alors que le reste est piégé dans la pastille. Ceci contribue à augmenter de manière notable la pression interne des crayons qui atteint, en fin d'irradiation, des valeurs de l'ordre de 40-60 bars à froid ;

- l'endommagement de la matrice par création de dégâts d'irradiation partiellement restaurés en réacteur ;
- pour les **taux de combustion*** supérieurs à 40 GWj/t, la création en périphérie de la pastille d'une zone restructurée avec des grains de petite taille (~0.2 μm) et une grande porosité fermée (~10 %), la porosité de fabrication étant ~5 %. Un mécanisme similaire conduit, dans le cas des combustibles MOX, à la restructuration des amas Pu dont la taille est supérieure à une dizaine de microns ;
- l'endommagement de la gaine lié à l'irradiation et sa double corrosion, externe sous l'influence de l'eau du circuit primaire (40-100 μm d'épaisseur d'oxyde) et interne sous l'influence du combustible (~5-10 μm d'épaisseur d'oxyde dans le Zircaloy-4).

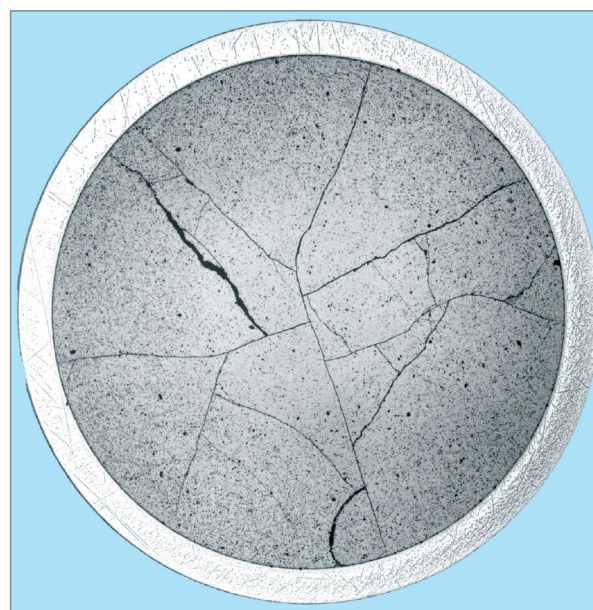


Fig. 86. Micrographie radiale d'un combustible nucléaire usé (microscopie optique) mettant en évidence l'existence de fractures radiales apparues lors de l'irradiation, sous l'effet des gradients de température.

Le combustible nucléaire usé a donc une structure et des propriétés mécaniques, physiques et chimiques bien différentes de celles d'un combustible vierge, d'autant plus que le refroidissement brutal en fin d'irradiation induit des déséquilibres internes importants.

Évolution attendue du combustible en entreposage à sec

Par définition, les installations d'entreposage à sec doivent assurer en situation nominale, tout au long de l'entreposage, un confinement total des assemblages de combustibles nucléaires usés qui ne devraient donc pas interagir avec le milieu environnant. Dans ces conditions, le combustible évolue essentiellement sous l'effet de ses propres déséquilibres chimiques, physiques ou mécaniques internes. Il s'agit donc d'une évolution intrinsèque du crayon combustible, affectant, d'une part, la pastille, d'autre part, la gaine.

Evolution intrinsèque de la pastille

La pastille de combustible irradié évolue essentiellement sous l'effet de la décroissance radioactive des émetteurs présents en son sein qui conduisent à une modification des inventaires chimiques et à une production significative d'hélium par décroissance **alpha***

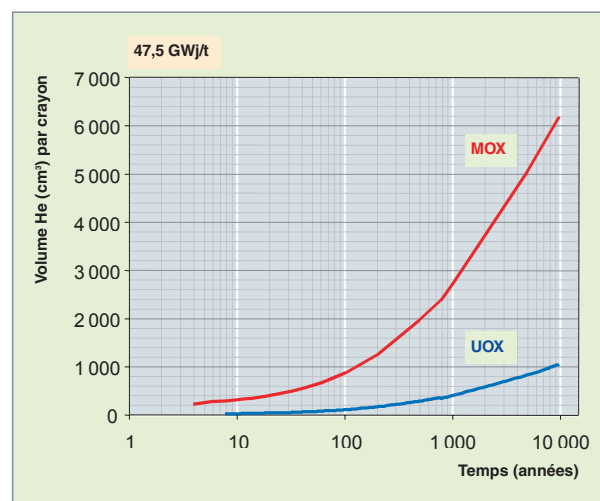


Fig. 87. Évolution en fonction du temps du volume d'hélium produit (dans les conditions normales de température et de pression) par des combustibles UOX et MOX ayant un taux de combustion de 47 GWj/t.

Pour donner un ordre de grandeur, si tout l'hélium produit dans le combustible était libéré, cela conduirait à une surpression de l'ordre de 125 bars dans un MOX et 19 bars, à 20 °C, dans un UOX après 300 ans de refroidissement.

Il a été montré que l'évolution des inventaires chimiques n'avait pas d'impact significatif sur l'état d'oxydation de la pastille combustible. En revanche, la décroissance alpha entraîne

l'accumulation d'une quantité importante d'hélium dans la pastille, surtout pour les combustibles riches en émetteurs alpha comme les combustibles MOX (voir fig. 87). La question qui se pose est de savoir ce qu'il advient de ce gaz produit principalement au sein des grains des pastilles combustibles : reste-t-il emprisonné dans l'oxyde (U,Pu)O₂ ou, au contraire, diffuse-t-il dans les grains pour être progressivement relâché vers les joints de grains puis les volumes libres du crayon ? Ce point est d'autant plus important que l'existence d'une irradiation alpha importante dans les pastilles est susceptible d'augmenter la mobilité des éléments chimiques par l'apparition d'un mécanisme supplémentaire de diffusion assistée par l'auto-irradiation alpha. Les résultats parcellaires dont on dispose aujourd'hui nous laissent à penser qu'aux échelles de temps de l'entreposage, ce mécanisme ne devrait pas entraîner une diffusion significative de l'hélium ou des éléments lourds. En revanche, il est possible qu'une partie des gaz de fission initialement piégés dans les joints de grains soit progressivement relâchée vers les volumes vides contribuant ainsi à la pressurisation du crayon.

Enfin, la tenue mécanique de la pastille repose intégralement sur la stabilité mécanique des joints de grains. Or, il s'avère difficile aujourd'hui de démontrer leur tenue à long terme, du

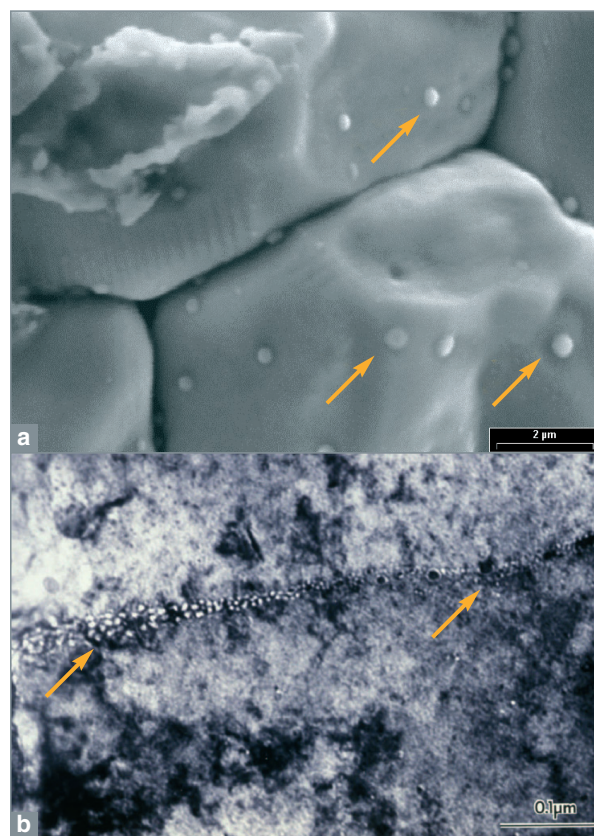


Fig. 88 (a) Micrographie d'un joint de grain après irradiation mettant en évidence la présence de précipités solides à cette interface et (b) micrographie en microscopie électronique à transmission mettant en évidence la présence de nombreuses micro-bulles aux joints de grains [1].

fait de l'accumulation de bulles de gaz, de dégâts d'irradiation et de précipités solides dans ces zones (fig. 88). On est donc amené à considérer qu'ils constituent un chemin privilégié de transport du gaz ou de l'eau. Des recherches sont menées actuellement pour approfondir ce point.

Évolution à long terme des gaines irradiées

Représentant la première barrière de confinement en entreposage, la **gaine*** du combustible est soumise à une contrainte mécanique importante, du fait de la pression interne des crayons. Si la température est suffisante, elle se déforme progressivement et plastiquement par fluage. À long terme, on ne peut exclure *a priori* un risque de rupture, si cette déformation devient trop importante et dépasse la résistance du matériau qui est elle-même susceptible d'évoluer au cours du temps. En particulier, des études sont en cours pour élucider l'influence que pourrait avoir l'hydrogène dissous dans la gaine sur l'évolution de sa résistance mécanique, notamment en cas d'orientation préférentielle radiale ou de microfissures (mécanisme de « *Diffused hydrogen Cracking* » DHC). Les études en cours visent donc non seulement à établir des modèles de déformation / rupture à long terme (modèle de fluage, critère de rupture) mais aussi à comprendre et modéliser l'évolution des propriétés mécaniques.

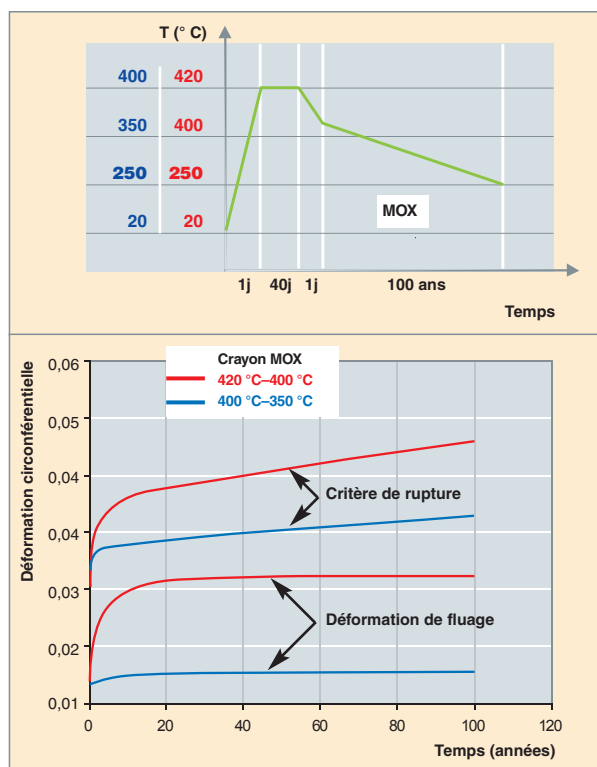


Fig. 89. Évaluation de la déformation et des marges à la rupture pour un crayon MOX en entreposage en supposant un relâchement initial de gaz de fission très pénalisant de 18 % (mais pas de relâchement additionnel).

L'évolution dans le temps de la contrainte sur la gaine, compte tenu des dégagements gazeux qui continuent pendant l'entreposage, a été calculée au CEA. Cette contrainte dépend fortement du scénario de température pris en compte. La figure 89 montre l'ordre de grandeur de la déformation de gaine et les marges restantes par rapport à la rupture, pour différents scénarios de température.

Malgré l'effort de R&D réalisé depuis plusieurs années et les nombreux résultats acquis, ces études ne permettent pas, aujourd'hui, de prédire avec certitude l'évolution de la gaine sur des durées séculaires. C'est pourquoi on estime aujourd'hui qu'on ne peut raisonnablement garantir la tenue mécanique de la gaine au-delà de 100 ans et qu'il est donc peu raisonnable de lui allouer une fonction de confinement au-delà d'une telle période.

Évolution attendue du combustible en stockage géologique profond

Contrairement à l'entreposage à sec de longue durée, le stockage géologique profond conduit inévitablement à la rupture progressive des différentes enveloppes du colis (par corrosion, essentiellement) et à l'arrivée de l'eau géologique au contact du combustible. Grossièrement, le combustible évolue durant cette première période de corrosion des enveloppes métalliques à l'abri de toute altération par les eaux du site, de manière intrinsèque comme en entreposage. Puis, dans une seconde période, il s'altère en présence d'eau et relâche progressivement autour du colis une partie des radionucléides qu'il contient.

Évolution du combustible avant l'arrivée de l'eau

De manière analogue à ce qui se produit en entreposage sec, le combustible évolue de manière intrinsèque sous l'influence de ses déséquilibres internes et des réactions de décroissance radioactive. La principale différence avec l'entreposage réside dans la durée plus importante qui conduit à la production d'une quantité plus importante d'hélium, augmente le relâchement total par diffusion vers les joints de grains et entraîne l'accumulation supplémentaire de dégâts d'irradiation. De même, la déstabilisation mécanique potentielle des joints de grains prend d'autant plus d'importance que la durée considérée augmente. C'est pourquoi on est amené à considérer cette microstructure comme un chemin préférentiel de transport de l'eau et de relâchement des radionucléides.

Contrairement à l'entreposage, cette phase d'évolution n'est pertinente que dans la mesure où elle conditionne l'état du combustible, lors de l'arrivée ultérieure de l'eau. L'enjeu principal de ces études est donc de connaître l'évolution au cours du temps de la localisation des radionucléides et des surfaces accessibles à l'eau, de manière à être capable de prédire leur relâchement ultérieur.

Le relâchement instantané de radionucléides, lors de l'arrivée de l'eau

L'eau, en arrivant au contact du combustible usé, solubilise l'ensemble des radionucléides présents dans les vides et sur les surfaces du combustible. Il en résulte un relâchement instantané de radionucléides appelé couramment « fraction labile ». La quantité de radionucléides ainsi relâchés dépend donc de leur localisation qui est fonction de l'évolution intrinsèque préalable, en particulier des processus de diffusion et de déstabilisation des joints de grains. Un modèle majorant de diffusion sous auto-irradiation alpha a été développé au CEA pour prédire l'évolution au cours du temps de la fraction labile en fonction de la date d'arrivée de l'eau au contact du colis. On considère ainsi que pour les produits de fission les plus mobiles, environ 15 % de l'inventaire est directement disponible, lors de l'arrivée de l'eau à 10 000 ans (tableau ci-dessous) pour un combustible ayant un taux de combustion moyen de 55 GWj/t. Cela correspond à la fraction de gaz de fission présents dans les volumes libres, les joints de grains et les pores du RIM en sortie de réacteur auquel on ajoute ce qui a pu diffuser des grains vers les joints de grains (par exemple, environ 5 % après 10 000 ans)

Radio-nucléide	Fraction labile (%)			
	Immédiatement après l'irradiation	Défaillance conteneur après 1 000 ans		
		1 000 ans	10 000 ans	100 000 ans
C 14	10	13	14	16
Cl 36	11	14	15	17
Se 79	11	14	15	17
I 129	11	14	15	17
Cs 135	11	14	15	17

Évaluation de la fraction dite **labile*** de quelques radionucléides à vie longue d'intérêt : proportion de l'inventaire total à considérer comme directement accessible à l'eau, en fonction de la date d'arrivée de l'eau dans le colis.

Altération du combustible en stockage et relâchement des radionucléides

L' UO_2 est relativement stable en milieu géologique profond, du fait du caractère réducteur du milieu (solubilité extrêmement faible $\sim 10^{-8}$ mol.L⁻¹). Cependant, la radioactivité résiduelle d'un combustible usé (notamment, la radioactivité alpha prépondérante à long terme) conduit à une dissociation des molécules d'eau par **radiolyse***, au niveau de l'interface combustible/eau (fig. 90). Les oxydants ainsi produits oxydent la surface du combustible (oxydation de U(IV) en U(VI)) et entraînent sa dissolution et le relâchement des radionucléides occlus. La modélisation de ces phénomènes est extrêmement complexe, dans la mesure où les réactions radiolytiques sont nombreuses (plus de 150 réactions dans les modèles couramment utilisés), de cinétiques rapides mais variées et dépendent largement de la chimie du milieu environnant. Des études

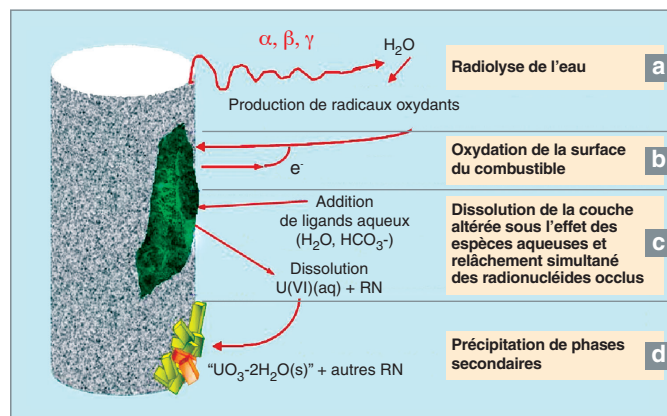


Fig. 90. Mécanismes généraux d'altération d'un combustible nucléaire usé en présence d'eau : (a) radiolyse de l'eau sous l'effet des rayonnements α β ou γ , (b) oxydation de la surface du combustible et transformation de U(IV) en U(VI), (c) dissolution de la couche altérée sous l'effet des espèces aqueuses et relâchement simultané des radionucléides occlus, (d) précipitation le cas échéant de phases secondaires.

sont en cours pour préciser de manière détaillée l'ensemble de ces processus et comprendre ainsi la manière dont les matériaux d'environnement influencent l'altération du combustible (couplage entre le colis et son environnement). Ainsi, les équipes suédoises ont mis en évidence récemment le rôle majeur que semble jouer l'hydrogène relâché par la corrosion des conteneurs métalliques sur ces processus de corrosion. Les résultats encore parcellaires disponibles dans la littérature semblent indiquer qu'il limiterait fortement l'altération du combustible en supprimant les oxydants produits par radiolyse. De même, il est probable qu'une partie des éléments relâchés par dissolution du combustible (uranium, actinides mineurs et produits de fissions) précipitent près du combustible sous forme de nouveaux minéraux dits « secondaires ». Si ces minéraux sont susceptibles de retenir une partie des radionucléides présents dans le combustible, il est clair qu'ils peuvent aussi contribuer au confinement du stockage.

On le voit donc, la phénoménologie de l'altération du combustible en stockage géologique est complexe. La prédiction de l'évolution à très long terme nécessite, par conséquent, de simplifier cette phénoménologie en ne retenant que les réactions prépondérantes et les faits établis : on néglige ainsi l'effet de l'hydrogène dont le rôle reste à préciser. Dans cet esprit, le CEA a développé un modèle majorant pour décrire le relâchement des radionucléides par dissolution radiolytique. Ce modèle permet de prédire le taux d'altération maximal du combustible en fonction du temps, en tenant compte de l'ensemble des incertitudes actuelles.

Conclusion

En conclusion, bien que le combustible nucléaire usé soit extrêmement complexe, les mécanismes de son évolution à long terme sont aujourd'hui clairement identifiés et étudiés. Ces résultats sont aujourd'hui capitalisés dans des modèles conservatifs d'évolution à long terme intégrant l'ensemble des incertitudes et des méconnaissances actuelles qui permettent d'envisager le devenir des combustibles en entreposage ou en stockage. Les modèles de relâchement en conditions de stockage sont aujourd'hui utilisés par l'**ANDRA*** pour réaliser ses calculs de performance et évaluations de sûreté [2]. En parallèle, le CEA continue à développer des recherches pour affiner ses modèles en cherchant à modéliser au mieux la phénoménologie complexe de la dissolution radiolytique et diminuer ainsi les marges retenues, et en prenant mieux en compte le couplage avec l'environnement, notamment autour de l'effet de l'hydrogène et le rôle des phases secondaires. Enfin, un effort significatif est porté progressivement sur la compréhension de l'évolution des joints de grains, de manière à être capable d'appréhender et de prédire toute évolution significative de la surface spécifique qui influence directement le relâchement des radionucléides en stockage.

En tout état de cause, les incertitudes sur le comportement à long terme du combustible usé amènent à conclure à la nécessité d'une puissante barrière ouvragée dans tous les concepts de stockage direct.

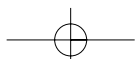
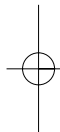
Le dégagement thermique important des combustibles usés imposera également des précautions d'espacement entre les conteneurs pour tous les concepts de stockage direct en milieu géologique.

► Références

[1] THOMAS, L.E. (1991), *Condensed-phase xenon and krypton in UO₂ spent fuel. Fundamental Aspects of Inert Gases in Solids*, Ed. S.E. Donnelly and J.H. Evans, Plenum Press, New-York.

[2] Dossier 2005 de l'ANDRA.

Christophe POINSSOT et Cécile FERRY,
Département de physico-chimie



Combustible des réacteurs à eau bouillante

Les réacteurs à eau bouillante (REB) représentent dans le monde un quart des réacteurs à eau légère (REP, REB, VVER). Ils sont implantés principalement aux États-Unis, au Japon et en Europe. Les constructeurs sont General Electric, Toshiba/Hitachi, AREVA-NP (ex Siemens), Westinghouse, et le groupe BNFL (ex ABB). La France ne possède aucun REB. À noter cependant que le groupe AREVA fabrique et retraite du combustible REB et que AREVA-NP est constructeur d'assemblages REB ATRIUM™. Dans ce contexte, les activités de R&D du CEA sont mineures, par rapport à celles liées au domaine du combustible REP.

Similitudes et différences avec le combustible REP

Comme dans les REP, le combustible des REB est composé de pastilles d' UO_2 fritté* insérées dans une gaine en Zircaloy*. La hauteur de la colonne fissile est comparable (3,7 m dans un des modèles les plus récents de réacteur à eau bouillante, l'« *Advanced Boiling Water Reactor* » [ABWR], contre 4,2 m dans un REP type EPR). Le diamètre des crayons (12,3 mm pour l'ABWR) est plus important que celui des REP (9,5 mm). La tendance de conception des nouveaux combustibles est de diminuer le diamètre des crayons. La comparaison s'arrête là, car l'arrangement des crayons, la répartition des enrichissements et l'empoisonnement sont assez différents entre REP et REB (fig. 91).

Les réacteurs à eau pressurisée (REP) utilisent l'eau en tant que réfrigérant et modérateur* neutronique sous forme monophasique. La densité de puissance est de 100 kW/l à une pression de 15 MPa. La masse volumique de l'eau varie assez peu par dilatation thermique à la traversée du cœur. Ainsi, l'arrangement du combustible se fait sous forme d'assemblages ouverts. Une partie des emplacements comporte des tubes guides pour l'insertion d'absorbants des neutrons par la partie supérieure ; ils forment également le squelette de l'assemblage. Le fonctionnement en cycle indirect permet l'ajout d'acide borique dans le circuit primaire pour le contrôle de la réactivité, l'eau restant toujours sous forme liquide. D'autres additifs permettent un contrôle fin de l'équilibre chimique.

Dans les réacteurs à eau bouillante, le réfrigérant et modérateur est sous forme diphasique. La densité de puissance et la pression (50 kW/l et 7 MPa) sont deux fois plus faibles que dans les REP. La densité du fluide varie de façon très impor-

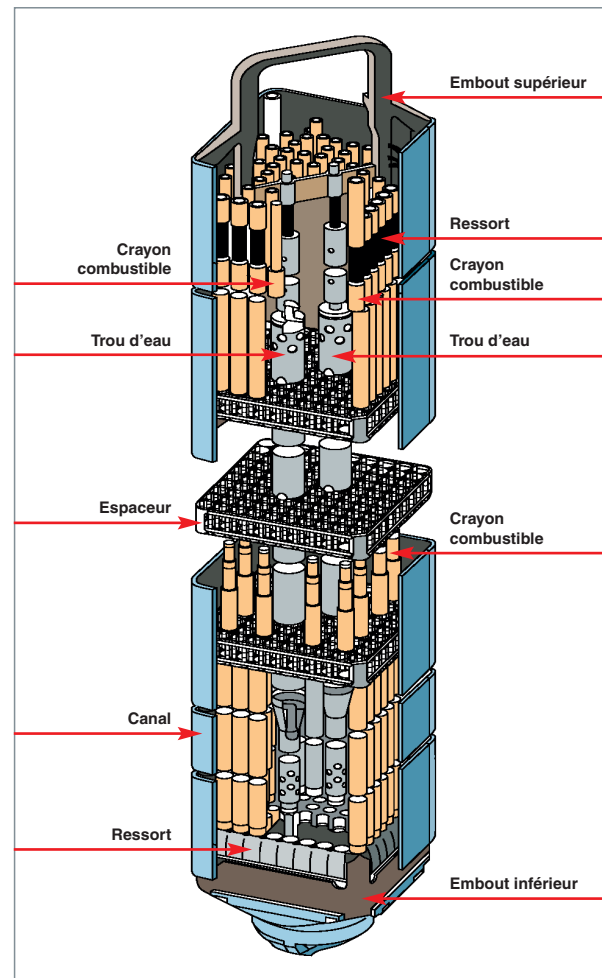


Fig. 91. Assemblage combustible pour réacteur à eau bouillante.

tante selon la cote axiale et la position radiale dans le cœur. Cela oblige à arranger le combustible sous forme de canaux pour éviter les écoulements transverses. Ainsi, on regroupe les crayons combustibles dans des boîtiers carrés en Zircaloy (fig. 91). Un diaphragme est placé en entrée de boîtier pour ajuster le débit et stabiliser l'écoulement. À cause de l'ébullition de l'eau en cœur, il est impossible d'avoir un contrôle supplémentaire de la réactivité à l'aide d'un poison soluble. L'antiréactivité est apportée par adjonction de poisons consommables, en général gadolinium, dans quelques crayons de l'assemblage et par des croix d'absorbant coulissant entre les boîtiers (fig. 92). Puisque la partie supérieure de la cuve est encombrée par les séparateurs et les sécheurs, l'introduction des croix en B_4C se fait par le bas.

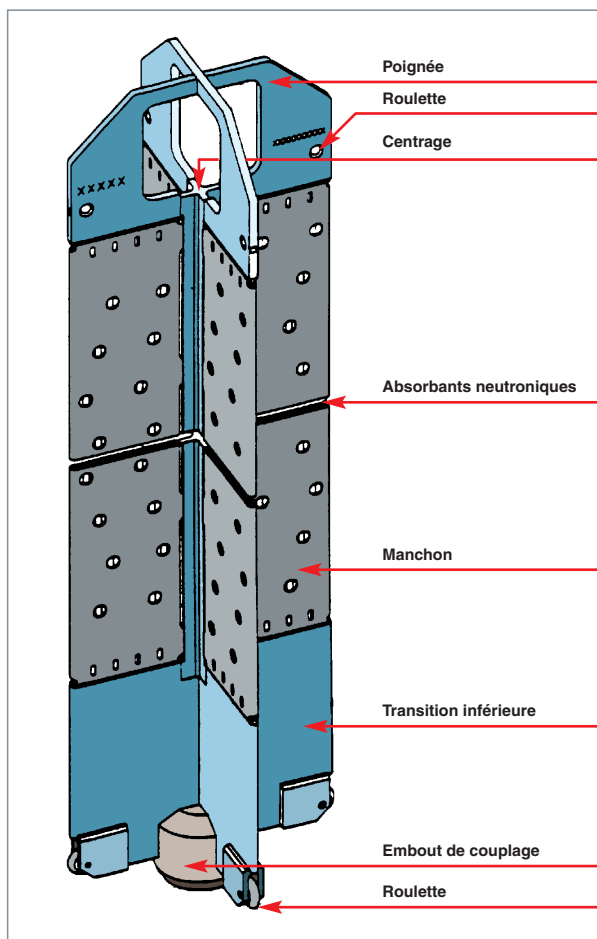


Fig. 92. Croix de contrôle pour réacteur à eau bouillante.

Le cœur de l'ABWR de General Electric est ainsi composé de 872 assemblages (pas des boîtiers de 155 mm) en 8x8 crayons et contrôlé par 205 croix d'absorbants.

Zonage axial et radial

L'arrangement du combustible en canaux thermalise fortement les neutrons au niveau des lames d'eau, ce qui provoque des augmentations locales de puissance en périphérie d'assemblage. Ces variations sont compensées en introduisant des « trous d'eau » au sein de l'assemblage avec des options variées selon les fabricants : suppression de 1 à 2 crayons combustibles, canal central d'eau, forme de croix d'eau, etc. L'action est renforcée en modulant l'enrichissement radial en U 235 des crayons (jusqu'à 9 enrichissements différents selon les fabricants) afin de limiter au mieux les pics de puissance au cours du cycle. L'enrichissement moyen des crayons en U 235 est de l'ordre de 4,5 %.

La seconde source d'hétérogénéité réside dans l'importante variation axiale de densité de l'eau suite à son ébullition. Ainsi, le combustible en pied d'assemblage baigne dans de l'eau liquide, avec un effet modérateur important pour les neutrons.

Par contre, en partie supérieure, le taux de vide atteint 70 %, rendant ainsi le spectre **épitthermique***. Cela a des incidences directes sur la consommation d'U 235, la production de Pu 239 et le profil axial de puissance au cours du cycle. Ces paramètres sont ajustés au moyen d'un zonage axial en enrichissement d'U 235, et pour les combustibles récents, par l'utilisation de quelques crayons de longueur réduite afin d'augmenter la proportion de modérateur en partie supérieure.

Taille du crayon et du boîtier

Les REB présentent la particularité d'une grande diversité de conception selon les constructeurs des différents pays et des évolutions au cours du temps. À partir des années 1970, les boîtiers étaient en 7 x 7 crayons pour passer et se stabiliser à 10 x 10 crayons. Ce changement s'est fait à taille de boîtier constant (130 mm de côté au pas de 155 mm) pour des raisons d'interopérabilité, notamment dans les réacteurs européens, ce qui amène à utiliser des crayons plus fins, avec pour conséquences une augmentation du rapport surface/volume et un meilleur contrôle des zonages d'enrichissement, d'empoisonnement et de gestion des trous d'eau.

Empoisonnement et contrôle de réactivité

Le contrôle de réactivité se fait par insertion de croix d'absorbants neutroniques entre les assemblages et par les **poisons*** consommables introduits dans une partie des crayons. Ces derniers permettent donc de compenser la réactivité du combustible en début de cycle. Les croix sont utilisées pour assurer la marge d'antiréactivité, y compris pour le cas le plus pénalisant : cœur neuf à froid. Elles sont utilisées, en fonctionnement, en liaison avec la variation du débit de recirculation cœur pour ajuster la puissance du réacteur, sa marge de stabilité et son profil axial de puissance. Ceci permet de définir des stratégies de fonctionnement favorisant la formation de Pu 239 à partir des captures U 238 en début de cycle dans la partie supérieure, puis sa consommation en fin de cycle. C'est ce fonctionnement qui permet d'accroître de façon significative le taux de combustion. Enfin, la prolongation de cycle peut être obtenue en diminuant la température d'entrée d'eau. Cet artifice permet ainsi d'augmenter la proportion d'eau liquide dans l'assemblage et donc de compenser la perte de réactivité du combustible par une augmentation de la modération.

Particularités de la gaine

L'ébullition nucléée étant un phénomène agressif pour la gaine, même pour des températures inférieures à 300 °C, on utilise en REB un alliage de Zircaloy-2 différent de celui des REP (Zircaloy-4). Le Zr-2 est un alliage de zirconium à 1,5 % d'étain qui contient 0,35 % de Fe, Ni et Cr.

Pour limiter le nombre de défaillances dues à l'interaction pastille-gaine, General Electric a proposé, en 1981, une gaine avec une couche interne (« liner »), concept maintenant retenu par la plupart des constructeurs. Il s'agit d'une gaine dont les 9/10 sont en Zircaloy-2 et le 1/10 interne en zirconium pur ou faiblement allié avec du fer. Ce matériau mou est à l'interface entre les aspérités de la pastille combustible et le corps de la gaine en Zr-2. Cela peut limiter le nombre de défaillances dues à l'interaction pastille-gaine, lors des transitoires de puissance.

Tendance en évolution du combustible

Les constructeurs œuvrent sur des projets de nouvelles architectures d'assemblage, dans le but d'accroître le taux de combustion, qui rattrape progressivement celui des REP, tout comme les marges de fonctionnement, la disponibilité du réacteur et la gestion des ressources en combustible.

La tendance est, pour une taille de boîtier identique, à l'augmentation du nombre de crayons en diminuant leur diamètre : passage du 8 x 8 au 9 x 9 puis 10 x 10 (fig. 93). Ainsi, la puissance linéique du crayon peut être diminuée. On dispose, par ailleurs, de plus de degrés de libertés à la conception pour la disposition des trous d'eau, l'empoisonnement des crayons, la répartition des enrichissements en U 235. Cela ouvre la voie

à un meilleur contrôle des distributions de puissance et de la consommation de l'uranium. Les marges de fonctionnement sont augmentées. Associé à de meilleures performances neutroniques, une augmentation de l'enrichissement permet d'atteindre de hauts taux de combustion. Les assemblages frais, mieux contrôlés, peuvent être placés au centre pour une gestion de cœur à faible fuite.

L'autre tendance est d'augmenter aussi la taille du boîtier dans le but de limiter la durée des campagnes de manutention des assemblages pendant les rechargements (assemblages ATRIUM 12 du SWR1000 d'AREVA NP, projet ABWR-II de Toshiba). Enfin, des études japonaises portent sur la possibilité d'utiliser une chaudière existante ou peu modifiée (l'ABWR) pour des chargements 100 % MOX ou des cœurs à haut taux de conversion (assemblages à pas triangulaire serré pour durcir le spectre neutronique).

► Références

[1] G. A. POTTS, « *Recent GE BWR fuel experience* », *GE Nuclear Energy Proceedings of the 1997 International Topical Meeting on LWR Fuel Performance*.

Philippe MARSALT,
Département d'étude des réacteurs

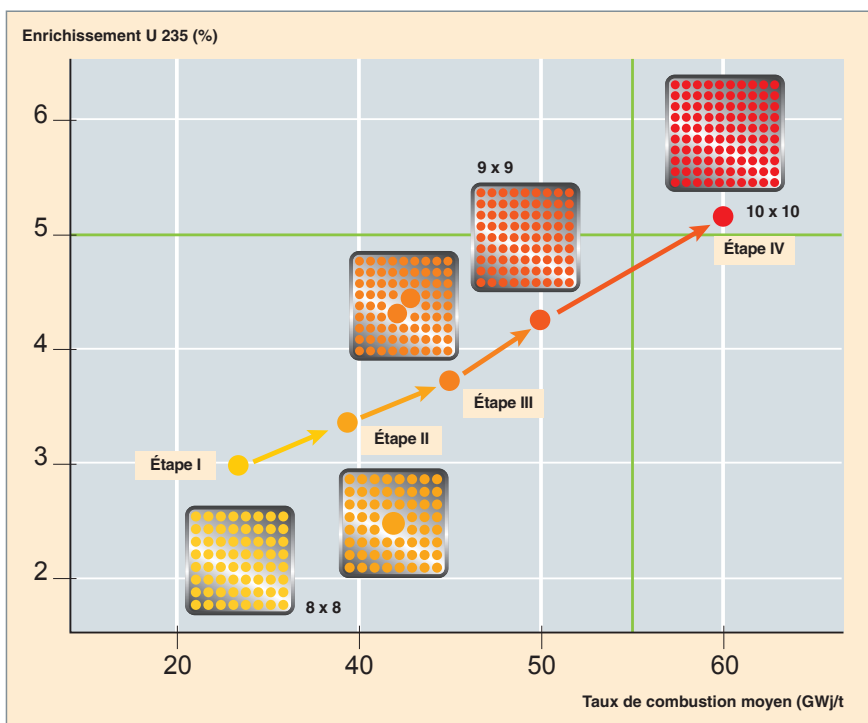
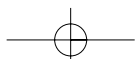
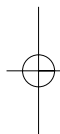
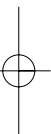


Fig. 93. L'amélioration des performances du combustible des réacteurs à eau bouillante.



Le combustible pour réacteurs à neutrons rapides à métaux liquides

Les ressources en uranium bon marché sont limitées, et le redémarrage du nucléaire actuellement observé dans le monde les consomme rapidement. Même en recyclant le combustible usé pour économiser au maximum les ressources naturelles, les systèmes nucléaires de deuxième ou de troisième génération ne sauraient être durables, car ils n'exploitent pas pleinement le potentiel énergétique des noyaux lourds. En pratique, seuls les réacteurs régénérateurs à neutrons rapides sont capables de transformer efficacement les noyaux **fertiles*** en noyaux **fissiles***.

À titre d'exemple, pour obtenir une énergie électrique de 1 GW.an, il faut fissionner environ 1,4 tonnes de matière. Pour cela, un réacteur à eau ordinaire (REP) a besoin de 140 tonnes d'uranium naturel, alors qu'avec un système régénérateur 1,4 tonnes de noyaux fertiles suffiraient. On voit que l'économie de matière première est significative !

Cependant, l'utilisation de neutrons rapides impose des contraintes bien particulières à la conception du réacteur et du combustible. Certaines contraintes sont d'origine neutronique. Les faibles **sections efficaces*** neutroniques en spectre rapide doivent être compensées par une forte concentration de noyaux fissiles dans le cœur et par un fort flux neutronique. La première contrainte impose une géométrie aussi resserrée que possible pour les éléments combustible. À cause de la seconde, il faut attendre des dommages d'irradiation sur les matériaux de cœur et les structures, sous l'important flux de neutrons rapides.

D'autres contraintes sont de nature technologique et technico-économique. Les taux de combustion élevés sont nécessaires à la valorisation des coûts de fabrication et de traitement du combustible. L'inventaire en plutonium (et/ou en U 235) nécessaire pour installer un gigawatt électrique de puissance nucléaire doit être minimisé, au moins durant la montée en puissance du parc de réacteurs à neutrons rapides. Une telle minimisation suppose à la fois une puissance spécifique élevée en réacteur et un temps de cycle hors réacteur court.

Le type de réacteur rapide ainsi esquissé trouve une première mise en œuvre possible dans une filière qui dispose déjà d'un retour d'expérience, notamment en France : celle des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium.

Afin de démontrer la compétitivité de la filière des réacteurs à neutrons rapide (RNR) par rapport aux réacteurs à eau légère, les efforts de recherche se sont focalisés en permanence sur l'obtention de taux de combustion élevés dans le but de réduire le coût du cycle [1]. Parmi les matériaux combustibles susceptibles de remplir cette mission, le combustible oxyde mixte (UO_2 ; PuO_2) s'est rapidement révélé comme le matériau de référence et son développement a été la pierre angulaire des programmes conduits pendant trois décennies au CEA [2], mais également à travers le monde.

Concernant la France, la plupart des résultats en conditions nominales de fonctionnement émanent des programmes expérimentaux et de surveillance réalisés dans RAPSODIE (1967-1983) et dans le prototype industriel PHÉNIX (1973-...) et SUPERPHÉNIX (1985-1998) [3]. De nombreux essais de comportement en conditions incidentelles et accidentelles ont été réalisés dans un cadre international pendant plus de vingt-cinq ans dans les réacteurs CABRI et SCARABÉE de Cadarache [4].

Le comportement du combustible oxyde des RNR se distingue de celui des REP par ses conditions de fonctionnement plus sévères. La puissance spécifique élevée du combustible ($\approx 2 \text{ kW/cm}^3$ pour PHÉNIX), associée à la faible conductivité thermique de l'oxyde mixte impliquent une température au centre des pastilles combustibles souvent supérieure à $2000 \text{ }^\circ\text{C}$. De fait, la microstructure initiale subit une évolution remarquable (fig. 94) marquée par une « restructuration » du combustible dans sa partie centrale provoquée par une migration vers le centre de la porosité de fabrication et par la « guérison » des fissures, avec la formation concomitante de grains colonnaires et d'une cavité centrale. Cette restructuration s'accompagne d'une redistribution notable de la concentration en plutonium avec une augmentation au centre.

Une grande partie des gaz de fission formés est relâchée dans le volume libre de l'aiguille combustible (les taux peuvent atteindre 90 % de la production) [fig. 95], ce qui constitue une grosse différence entre les combustibles REP et les combustibles RNR. Cependant, dans les seconds, on n'a jamais cherché à retenir les gaz de fission dans la céramique, et seule la partie externe de la pastille en retient une partie. Ce fort relâchement des gaz de fission ne constitue pas un problème en soi, comme pour le combustible des REP, car cet état de fait est pris en compte dès le dimensionnement avec la présence dans l'aiguille de grands volumes d'expansion : 2,7 m d'aiguille

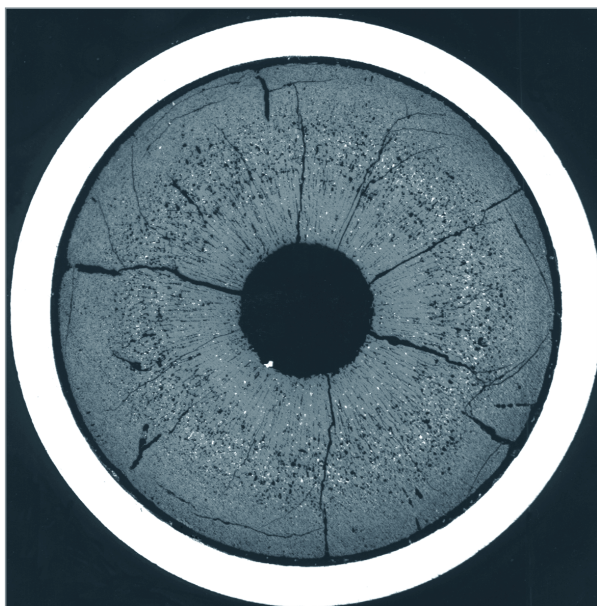


Fig. 94. Coupe métallographique transversale au plan de flux maximal d'une aiguille combustible PHÉNIX montrant la restructuration importante du combustible – Combustible : $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_2$, Gaine : acier 15-15 Ti ϵ , taux de combustion max. : 13,3 % FIMA (125 GWj/tM), Dose max. : 115 dpa.

pour 1 m de colonne fissile. À forts taux de combustion (> 8 % FIMA*), les produits de fission (PF) volatils (Cs, I, Te) ou même métalliques (Mo) sont partiellement relâchés hors du combustible et finissent par constituer un joint oxyde gaine (JOG) entre la périphérie de la pastille et la gaine.

La migration radiale et axiale [5] de certains PF : Te, I associée à une augmentation avec le taux de combustion du potentiel d'oxygène du combustible conduit de manière stochastique à l'apparition d'une corrosion interne de la gaine localisée dans le tiers supérieur de la colonne fissile (fig. 96).

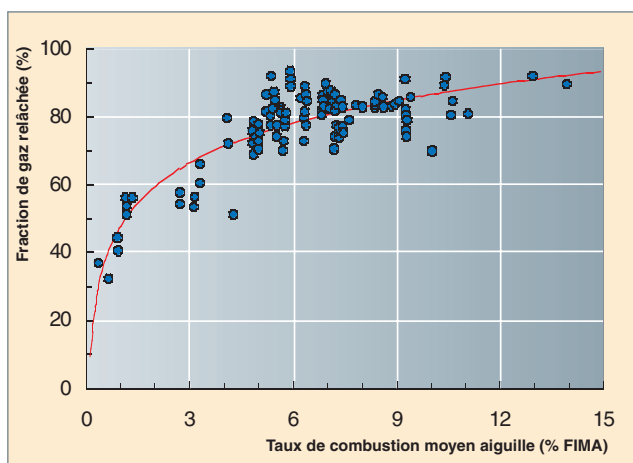


Fig. 95. Évolution en fonction du taux de combustion du taux de relâchement des gaz de fission d'aiguilles combustibles provenant d'assemblages standards et expérimentaux irradiés dans PHÉNIX.

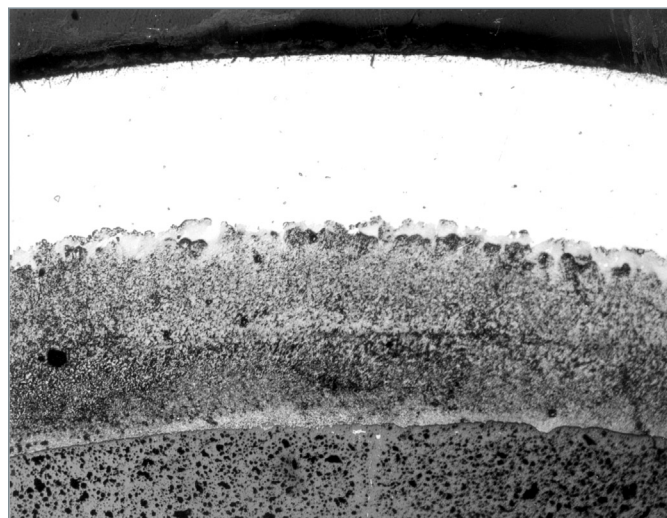


Fig. 96. Exemple d'une très importante corrosion interne de la gaine (~ 40% de l'épaisseur initiale) pour un élément combustible expérimental PHÉNIX à gaine en acier 15-15 Ti ϵ irradié à un taux de combustion élevé (16,9 % FIMA), correspondant à une dose de 155 dpa.

Ce phénomène est considéré comme un des facteurs limitants pour l'atteinte de taux de combustion élevés (15 % FIMA). Des remèdes tels que l'utilisation de pièges chimiques dans l'oxyde ou le recours à une couche protectrice de la paroi interne de la gaine peuvent différer la corrosion.

Un autre inconvénient majeur de l'oxyde est sa non-compatibilité avec le sodium. Néanmoins, de nombreuses études hors pile ainsi que le retour d'expérience de ruptures naturelles de gaine dans RAPSODIE et PHÉNIX ont permis de cerner les conditions thermiques, physico-chimiques et mécaniques d'évolution du défaut initial en rupture de gaine ouverte et ainsi de proposer une gestion adéquate par l'exploitant des assemblages défaillants.

Si l'oxyde mixte a prouvé son comportement satisfaisant jusqu'à des taux de combustion très élevés (> 15% FIMA) ainsi que pour les différentes étapes du cycle : fabrication, entreposage et retraitement, ses principaux inconvénients : faible densité en atomes lourds et mauvaise compatibilité avec le sodium ont conduit les équipes du CEA à s'intéresser à des combustibles « avancés » tels que des combustibles métalliques ou les carbures et nitrures [6].

Ces deux derniers combustibles réfractaires présentent les avantages d'une densité plus élevée en atomes lourds permettant un gain de régénération interne plus élevé (allongement de cycle et production accrue de Pu) et d'une compatibilité totale avec le sodium, évitant ainsi des arrêts intempestifs du réacteur pour décharger un assemblage ayant subi une rupture de gaine [1].

Ces combustibles présentent aussi l'intérêt d'une conductivité thermique meilleure que celle de l'oxyde, autorisant des températures de fonctionnement plus basses permettant, au besoin, d'accroître les puissances linéiques de fonctionnement, tout en regagnant des marges significatives par rapport au risque de fusion à cœur des pastilles. Cependant, ces combustibles dits « froids » manifestent un gonflement 2 à 3 fois supérieur à l'oxyde ; en outre, le relâchement des gaz de fission, quoique restant inférieur à celui de l'oxyde, peut tout de même devenir significatif (> 50 %) pour des taux de combustion importants (10 % FIMA). La forte vitesse de gonflement associée à une viscoplasticité moindre de ces combustibles (un facteur 10 par rapport à l'oxyde), engendre une interaction mécanique forte entre combustible et gaine, une fois le jeu de fabrication rattrapé. L'expérience acquise indique qu'il est impératif de réduire à la fabrication leur densité de remplissage² ($D_R < 75 \% D_{Th}$) pour espérer viser sans trop de risque de rupture de gaine les mêmes taux de combustion que l'oxyde. En comparaison de l'énorme expérience accumulée avec le combustible oxyde, le carbure, et plus encore le nitrure, laissent aujourd'hui beaucoup de questions sans réponse sur leur réel potentiel comme combustible des RNR sodium. Une nouvelle phase de réflexion et d'expérimentation devra être entreprise pour évaluer non seulement l'aptitude de ces combustibles à atteindre des taux de combustion élevées en conditions nominales, mais également les avantages potentiels (ou les inconvénients) de leur comportement en conditions accidentelles, ainsi que l'ensemble des problèmes du cycle associés à leur mise en œuvre. En particulier, ces combustibles sont-ils ou non mieux à même de recycler les actinides mineurs ?

Concernant le combustible métallique, après les tentatives décevantes des années 50-60, seuls les Américains de l'*Argonne National Laboratory* ont poursuivi une R&D significative jusqu'au début des années 90. De nombreuses études d'alliages combustibles leur ont permis d'obtenir *in fine*, avec des alliages du type U-Pu-Zr, des performances comparables en termes de taux de combustion au combustible oxyde. De plus, cette expérimentation repose sur une base conséquente d'environ 150 000 aiguilles irradiées dans le réacteur EBR II. Bien entendu, ce combustible présente aussi des inconvénients dont les deux principaux sont un risque de réaction chimique avec la gaine, au-dessus de 600 °C (formation potentielle d'un eutectique), ce qui impose de réduire de fait la température maximale admissible du caloporteur en fonctionnement nominal et, par voie de conséquence, le rendement du réacteur, ainsi qu'un cycle du combustible par procédé électrochimique, jugé par les américains non proliférant avec intégration sur site, mais dont la démonstration à l'échelle industrielle (recyclage du Pu et des actinides mineurs, gestion des déchets) reste à faire...

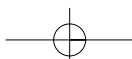
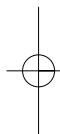
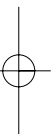
2. La densité de remplissage d'une aiguille combustible est égale au rapport : section pastille combustible sur section interne gaine que multiplie la densité du combustible, exprimée en % de sa densité théorique.

► Références

- [1] H. BAILLY, D. MENESSIER ET C. PRUNIER, « *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides* », série Synthèses Eyrolles (1996), chapitres III et VI.
- [2] R. LALLEMENT, H. MIKAILOFF, J.P. MUSTELIER, J. VILLENEUVE, *Fast Breeder Reactor fuel design principles and performance*, Nuclear Energy, **28**, 1 (1989).
- [3] J.-L. RATIER, A. CHALONY, G. CLOTTES, P. CHANTOIN, P. COURCON, *Behaviour of PHENIX standard fuel*, International Conference on Reliable Fuels for Liquid Metal Reactors, Tucson (1986).
- [4] I. SATO, F. LEMOINE AND D. STRUWE, « *Transient fuel behavior and failure condition in the CABRI-2 experiments* », Nuclear Technology 145 p. 115-137 (2004).
- [5] M. TOURASSE, M. BOIDRON, B. PASQUET, *Effect of clad strains on fission product chemistry in PHENIX pins at high burn-up*, Material Chemistry'92, Tsukuba, Japan (1992).
- [6] J.-L. FAUGÈRE, M. PELLETIER, J. ROUSSEAU, Y. GUÉRIN, K. RICHTER, G. LEDERGERBER, *The CEA Helium nitride fuel design*, ANP'92 - International Conference on design and safety of advanced nuclear power plants, Tokyo, Japan (1992).

Michel PELLETIER,

Département d'études des combustibles



Dégâts d'irradiation par les neutrons rapides dans les matériaux de structure

Dégâts induits dans les métaux par les neutrons rapides

Comme souligné au chapitre précédent, l'obtention de **taux de combustion*** élevés passe par un temps de séjour dans le cœur du RNR de plusieurs années soumettant de la sorte les matériaux de structure de l'assemblage, tube de gaine des aiguilles combustibles et boîtier hexagonal des assemblages à de très fortes **fluences*** de neutrons rapides³ (quelques 10^{27} n/m²)⁴.

Ce flux très élevé rencontré dans le cœur des RNR refroidis au sodium (quelques 10^{19} n/[m².s]) est la principale source de dommages créés dans les gaines et les tubes hexagonaux (TH) qui rassemblent et enferment les aiguilles des assemblages combustibles [1].

Sous l'action des neutrons rapides, les noyaux sont éjectés de leur site d'équilibre et engendrent par collision le déplacement de nombreux noyaux, créant ainsi une cascade de déplacements ; il en résulte des échanges d'atomes entre sites du réseau cristallin mais également la création de **défauts ponctuels*** de type paires de Frenkel constituées de lacunes et atomes en position interstitielle en nombre égal. De plus, certains éléments peuvent capturer des neutrons et donner lieu à des réactions nucléaires. Ainsi, les réactions (n, α) et (n, p) conduisent à la formation respectivement d'hélium et d'hydrogène qui vont, soit en précipitant pour former des bulles, soit en modifiant la composition chimique du matériau, changer ses propriétés au cours de l'irradiation.

Les **paires de Frenkel*** créées ne restent pas stables ; des recombinaisons immédiates ou différées se produisent. Les défauts intrinsèques du matériau (dislocations, joints de grains, porosité) jouent, sur ce point, un rôle important ; interstitiels comme lacunes peuvent s'y éliminer. L'élimination des défauts ponctuels sur ces « puits » modifie dans le temps la microstructure du matériau : évolution du réseau de dislocation, migration des joints de grains. Par ailleurs, ces défauts ponctuels peuvent s'agglomérer en amas : la coalescence d'**interstitiels*** crée des boucles de **dislocation***, tandis que

la coalescence de **lacunes*** peut soit conduire à des boucles, soit initier une cavité. Ce dernier processus de germination et croissance des cavités conduit à une augmentation de volume cumulative du matériau bien supérieure à la valeur de saturation due aux défauts isolés.

La température d'irradiation a une implication déterminante sur l'ensemble de ces phénomènes. Les basses températures (< $0,3 T_f$, où T_f est la température de fusion de la gaine) favorisent la sursaturation des défauts dans le matériau et un gonflement à saturation ne dépassant pas 1 %. Les températures moyennes (entre $0,4$ et $0,5 T_f$)⁵ favorisent les processus de germination et de croissance des cavités, donc un gonflement du matériau. Les hautes températures (> $0,6 T_f$) conduisent à un recuit permanent des défauts ponctuels créés par les neutrons rapides.

Ce phénomène de gonflement des aciers par germination et croissance de cavité a été clairement mis en évidence par microscopie électronique en transmission en 1967 sur les gaines des éléments combustibles du réacteur DFR (Grande Bretagne) [2]. Des observations similaires ont été faites presque simultanément aux États-Unis (EBR-II) et en France (RAPSODIE). Compte tenu des conséquences du gonflement en termes de durée de vie des assemblages, d'importants programmes de R&D ont alors été lancés pour mieux appréhender les mécanismes et proposer des solutions.

Quels matériaux utiliser ?

Au CEA, durant les trente dernières années, les études se sont focalisées sur trois grandes familles de matériaux compatibles avec le combustible oxyde et le sodium : Les aciers austénitiques basés sur la nuance AISI 316, les alliages de nickel de la famille des Inconels et les aciers ferritiques-martensitiques au chrome-molybdène [3, 4].

Le premier acier utilisé dans RAPSODIE, puis pour la première charge de PHÉNIX, pour les TH et les gaines, a été l'acier 316 à l'état hypereutecté qui a permis d'atteindre des doses de l'ordre de **50 dpa***. À cette dose, le gonflement volumique dépasse 10 %, ce qui est incompatible avec les critères fonctionnels de l'assemblage. Il convenait de trouver une parade à l'instabilité métallurgique des aciers austénitiques entre 500 et 600 °C. La première évolution a été un écrouis-

5. Soit 500 à 600 °C pour un acier inoxydable austénitique de type AISI 316.

3. Sont considérés comme neutrons rapides les neutrons dont l'énergie est supérieure à 0,1 MeV.

4. Des codes basés sur le modèle des collisions binaires ont permis d'établir un coefficient d'efficacité de déplacement en prenant en compte les effets de réseau. Ils sont à l'origine de l'unité de dommage la plus utilisée : le dpa (pour l'acier : $1 \text{ dpa} \approx 2 \cdot 10^{25} \text{ n/m}^2 \text{ E} > 0,1 \text{ MeV}$). Suivant le spectre neutronique du réacteur, cette correspondance entre dpa et fluence neutronique varie.

sage des tubes avant utilisation d'environ 15 à 20 %. L'augmentation de la densité de dislocations par ce traitement mécanique favorisait l'élimination des défauts ponctuels et augmentait quelque peu la dose d'incubation du gonflement. Malgré tout, un gonflement à haute température (~ 600 °C) subsistait. La présence d'éléments d'addition, en faible concentration (< 1 %), modifie la mobilité des défauts ponctuels, du fait de l'interaction attractive ou répulsive entre impureté et défaut ponctuel. Parmi les éléments d'addition bénéfiques, le choix du titane associé à une optimisation du rapport Ti/Si s'est imposé et a amélioré la résistance au gonflement dans tout le domaine de fonctionnement des gaines et TH, sans entraîner de fragilisation réhibitoire du matériau. La nuance « 316 Ti écroui » a permis d'atteindre des doses de l'ordre de 90 à 100 dpa. Mais pour obtenir ces bons résultats, il faut que ces éléments d'addition conservent toute leur efficacité ; pour cela, ils doivent se présenter sous la forme d'une fine précipitation qui ne peut être obtenue que par des traitements thermomécaniques bien contrôlés durant toutes les phases de fabrication, depuis l'aciériste jusqu'au tubiste. Des spécifications précises ont dû être rédigées pour parvenir à un produit reproductible à l'échelle industrielle.

En jouant aussi sur les éléments d'addition majeurs de l'acier (Ni et Cr), on est passé à la nuance « 15-15 Ti écroui », plus riche en nickel et plus pauvre en chrome que l'acier 316 qui est ainsi devenue la référence française pour le matériau de gaine. Des recherches réalisées sur cette nuance est née une spécification optimisée pour le projet européen de RNR : EFR,

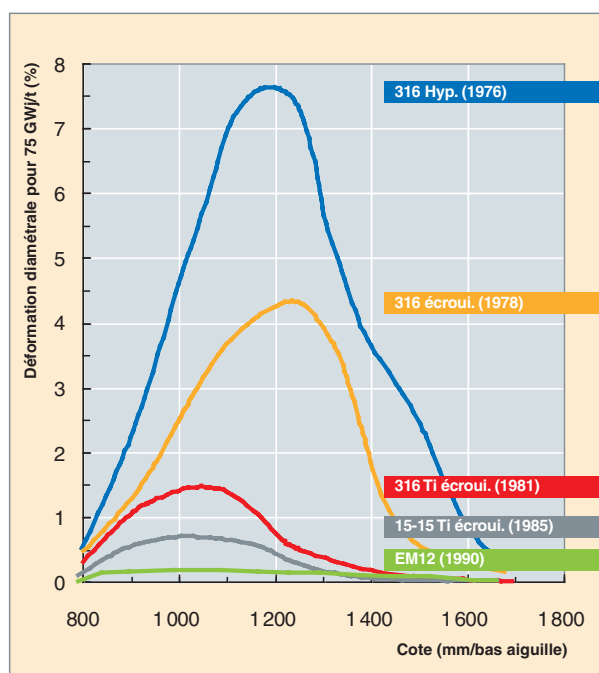


Fig. 97. Réduction à taux de combustion constant de la déformation diamétrale maximale des gaines des assemblages combustibles irradiés dans PHÉNIX grâce aux améliorations métallurgiques apportées aux aciers inoxydables austénitiques – Comparaison avec l'acier ferrito-martensitique EM12.

dénommée « *Austenitic Improved Material* » nuance 1 (AIM1) ; elle équipe actuellement les aiguilles de la dernière campagne de fabrication pour PHÉNIX et est apte à atteindre une dose maximale de 130 dpa. La figure 97 illustre cette évolution de la résistance au gonflement des gaines en acier austénitique des aiguilles PHÉNIX.

La deuxième classe de matériaux est celle des alliages de nickel. Des essais d'irradiation systématiques réalisés dans les années 60 ont montré le rôle important du nickel sur la résistance au gonflement ; le CEA comme ses homologues aux États-Unis et en Grande-Bretagne a ainsi étudié différents alliages parmi lesquels l'Inconel 706 et le Nimonic PE16. Si les irradiations ont bien confirmé le faible gonflement de cette famille d'alliages pour des doses supérieures à 120 dpa, elles ont aussi mis en évidence une forte tendance à la fragilisation à l'état irradié ; la fragilité excessive de l'Inconel 706 par précipitation de phase η aux joints de grains induite par l'irradiation a provoqué des ruptures de gaine très étendues sur des aiguilles combustibles soumises à une interaction mécanique combustible gaine, lors d'une remontée à puissance nominale du réacteur ; cet état de fait a conduit le CEA à abandonner les études sur ces matériaux, seule la Grande-Bretagne a persévéré avec des nuances optimisées du PE16.

La structure cubique centrée de la classe des aciers ferritiques-martensitiques leur confère une grande stabilité structurale sous irradiation et une bonne résistance au gonflement. Cependant, leur tenue en fluage thermique inférieure à celle des aciers austénitiques s'accommode mal de leur utilisation comme matériau de gaine mais convient bien pour le TH dont la température maximale de fonctionnement reste inférieure à 600 °C. Comme attendu, de faibles gonflements (1 à 3 %) selon la composition et l'état structural des aciers ont été observés jusqu'à 150 dpa. L'acier EM10 (9Cr-1Mo) s'est révélé le plus stable sur tout le domaine de température d'irradiation et l'acier EM12 (9Cr-2Mo-Nb-V), utilisé pour les gaines, le plus résistant au fluage thermique. Une attention particulière a été portée sur l'évolution sous irradiation de la température de transition ductile fragile (TTDF) caractéristique de ces matériaux ferritiques. Contrairement à la nuance F17 (17 %Cr) qui voit sa TTDF atteindre 250 °C sous irradiation, température incompatible avec les opérations de maintenance des assemblages, l'EM10 conserve une TTDF inférieure à la température ambiante jusqu'à 100 dpa (fig. 98).

Le point faible des aciers ferritiques-martensitiques reste leur tenue mécanique à haute température. Pour les utiliser comme matériau de gaine pour les très fortes doses (200 dpa) visées pour les RNR de 4^e génération, un renforcement de la microstructure par une microdispersion de phase durcissante tels que des nano-précipités d'oxydes a été étudiée. Des premières nuances d'alliages ODS (*Oxide Dispersion Strengthened*), sur la base d'un acier ferritique à 13 %Cr contenant des nano-précipités d'oxydes de titane ou d'yttrium, ont été irradiés dans PHÉNIX comme gaine d'aiguilles

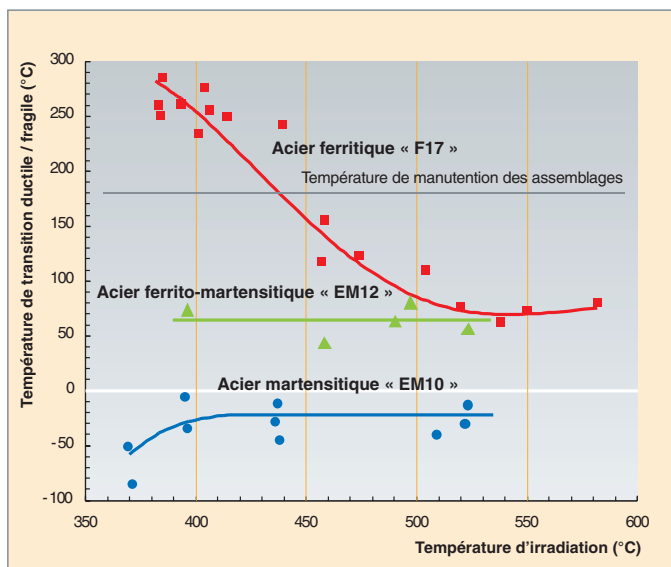


Fig. 98. Évolution de la température de transition ductile/fragile d'aciers ferritiques martensitiques : nuances F17, EM10 et EM12, utilisés comme matériau de tube hexagonal (TH) d'assemblages RNR.

combustibles dans les années 80, en collaboration avec Belgonucléaire. Si les examens ont confirmé leur bonne stabilité dimensionnelle autour de 80 dpa, ils ont aussi révélé une fragilisation intolérable induite par la précipitation d'une phase fragilisante. Néanmoins, les études sur des ODS de types martensitique (9 % Cr) et ferritique (> 12 % Cr) continuent d'être menées aujourd'hui au CEA avec, en particulier, une collaboration bilatérale avec le Japon (JAEA) pour disposer,

in fine, d'un matériau de gaine à très hautes performances. Cependant, la mise au point de ces nouveaux ODS sera longue avant de parvenir à un matériau industrialisable.

En conclusion, les améliorations constantes apportées aux aciers austénitiques et le recours à certains aciers martensitiques pour le TH expliquent l'augmentation des performances des assemblages, tout au long de ces trente dernières années d'exploitation du réacteur PHÉNIX (fig. 99), en termes de taux de combustion et de dose.

De plus, les études sur les matériaux ont été accompagnées d'une analyse des règles de dimensionnement des matériaux de structure dans cet environnement hostile qu'est le cœur d'un RNR. La méthodologie RAMSES II [5], basée sur le standard RCC-MR et prenant en compte les spécificités des matériaux irradiés (dommages, fragilisation, modes de rupture) avait ainsi été proposée par le CEA dans un cadre européen pour l'ex-projet de réacteur rapide au sodium EFR et pourra être appliquée au dimensionnement des assemblages du prototype de RNR de 4^e génération.

► Références

- [1] H. BAILLY, D. MENESSIER ET C. PRUNIER, « *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides* », série Synthèses Eyrolles (1996), chapitre III.
- [2] J. H. KITTEL, B. R. T. FROST, J.-P. MUSTELIER, K. Q. BAGLEY, G. C. CRITTENDEN AND J. VAN DIEVOET, « *History of fast reactor development* » Journal of Nuclear Materials, 204 (1993) 1-13.

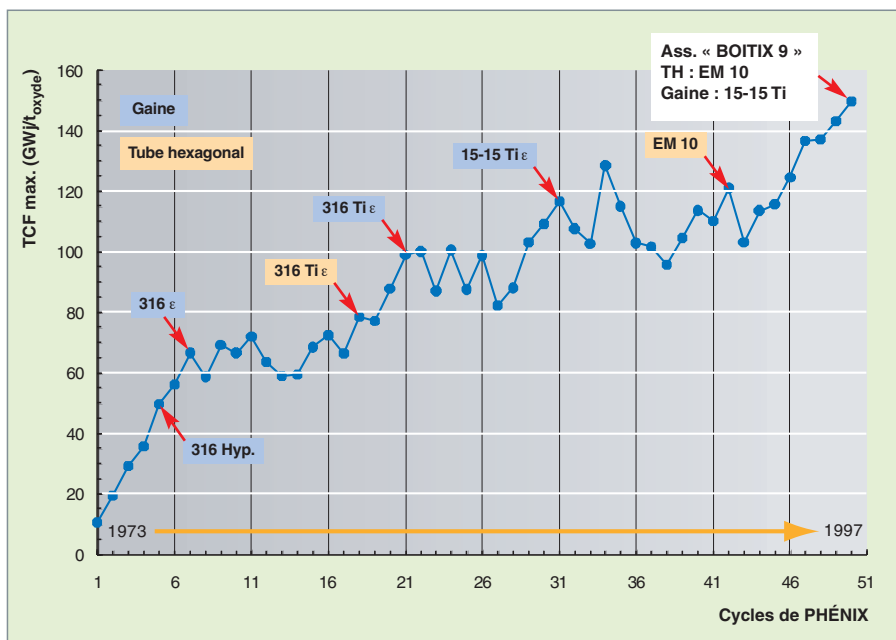


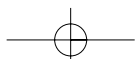
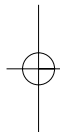
Fig. 99. Évolution des performances en taux de combustion des assemblages combustibles, en fonction des cycles d'irradiation du réacteur PHÉNIX, due au passage progressif vers des matériaux de structure (TH et gaine) à meilleure résistance au gonflement sous irradiation.

[3] J.L. SERAN et al., *Behaviour under neutron irradiation of the 15/15 Ti and EM10 steels used as standard materials of the PHENIX fuel subassembly*, 15th international symposium on effects of radiation on materials, Nashville, USA (1990).

[4] A. MAILLARD, M. TOURON, J.-L. SERAN, A. CHALONY, *Swelling and irradiation creep of neutron irradiated 316 Ti and 15-15 Ti steels*, Effects of Radiation on Materials, 16th International Symposium, ASTM, STP 1175, Philadelphia (1993).

[5] Groupe de Travail RAMSES 2, « *Règles d'analyse mécanique des structures irradiées* », rapport CEA-R-5618.

Michel PELLETIER,
Département d'études
des combustibles



Combustibles et cibles pour la transmutation en RNR

Un des axes de recherche du CEA sur la gestion des déchets de haute activité à vie longue (essentiellement les actinides mineurs : neptunium, américium et curium, ainsi que certains produits de fission comme le technétium) consiste en l'étude de leur transmutation, c'est-à-dire leur transformation, sous un flux de neutrons, en éléments non radioactifs ou à durée de vie beaucoup plus courte.

La transmutation d'un radionucléide par les neutrons peut se réaliser soit par réaction de fission, soit par réaction de capture neutronique. Dans le cas d'une disparition par fission, le noyau atomique est transformé en produits de fission, majoritairement à vie courte (inférieure à cinquante ans). Dans le cas d'une disparition par capture, le noyau est transformé en un autre radionucléide, ne permettant pas nécessairement une réduction significative de la radiotoxicité à moyen ou long terme. Pour une transmutation efficace, on cherche donc naturellement à favoriser les réactions de fission plutôt que celles de capture.

Les RNR : des réacteurs capables de transmuter efficacement les actinides

Le spectre rapide des RNR offre de meilleures conditions pour une transmutation par fission que le spectre thermique des REP. Le tableau ci-dessous donne, pour chaque radionucléide à transmuter, les **sections efficaces*** moyennes de capture σ_c et de fission σ_f , ainsi que le rapport α de ces sections, pour trois spectres neutroniques caractéristiques : un spectre REP avec combustible UOX, un spectre REP avec combustible MOX et un spectre RNR avec un combustible MOX. Le rapport σ_c/σ_f est un indicateur des probabilités de disparition par capture (section σ_c) plutôt que par fission (section σ_f) à la pre-

mière interaction neutronique. On voit qu'il est réduit d'un facteur 5 au moins pour la majorité des radionucléides, quand on passe du spectre de neutrons d'un REP (thermique ou épithermique) à celui du RNR.

Recyclage : homogène ou hétérogène ?

Différentes méthodes de transmutation en RNR sont actuellement étudiées. Pour les actinides mineurs, deux modes de transmutation existent, chacun avec ses avantages et ses inconvénients. Le premier consiste à diluer les actinides mineurs dans le combustible standard des RNR. La transmutation a lieu au sein du combustible : c'est le mode homogène. On profite, dans ce cas, de la grande similitude cristalline qui existe entre les différents oxydes d'actinides (structure cubique de type fluorine) et de leur mutuelle solubilité. Pour minimiser l'impact de l'introduction des actinides mineurs sur les paramètres de sûreté du RNR, la teneur en actinides mineurs dans le combustible reste relativement faible (moins de 5 % des atomes lourds). Dans ces conditions, on n'attend pas d'évolution significative des performances du combustible, dont les propriétés thermo-mécaniques restent très proches de celles du combustible standard. L'expérience d'irradiation SUPERFACT dans Phénix [1] en est une bonne démonstration (fig. 100). L'impact est toutefois beaucoup plus important sur les usines de fabrication du combustible. Les fortes émissions neutroniques et puissance thermique de l'américium, et surtout du curium, engendrent des contraintes supplémentaires d'exposition pour le personnel, de **criticité*** ou de nouveaux risques liés au dégagement thermique. La fabrication doit se concevoir en cellules blindées avec télémanipulateurs, ce qui nécessite de repenser les procédés (compacité des installa-

Sections efficaces (exprimées en barns*) des radionucléides à transmuter

Isotope	Réacteur à neutrons lents (REP-UOX)			Réacteur à neutrons épithermiques* (REP - MOX)			Réacteurs à neutrons rapides (RNR)		
	σ_f	σ_c	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$	σ_f	σ_c	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$	σ_f	σ_c	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$
Np 237	0,52	33	63	0,6	18	30	0,32	1,7	5,3
Am 241	1,1	110	100	0,8	35,6	44,5	0,27	2,0	7,4
Am 243	0,44	49	111	0,5	31,7	63,4	0,21	1,8	8,6
Cm 244	1,0	16	16	1	13,1	13,1	0,42	0,6	1,4
Cm 245	116	17	0,15	33,9	5,4	0,2	5,1	0,9	0,18
Tc 99	-	9	-	-	-	-	-	0,5	-

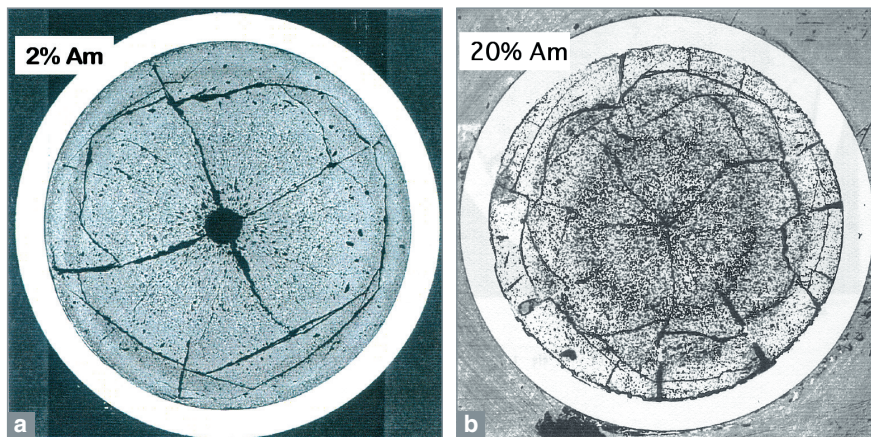


Fig. 100. Combustible de l'expérience SUPERFACT après irradiation. Le combustible contenant 2 % d'américium (à gauche) a subi une restructuration typique d'un combustible RNR standard, alors que le combustible contenant 20 % d'américium présente un gonflement important lié à la création d'un nombre élevé de bulles d'hélium, produit de la décroissance alpha du curium 242, lui-même formé par capture neutronique de l'américium 241.

tions, robustesse et simplicité des procédés, gestion intégrée des déchets et rebuts) afin de les adapter à une manipulation et une maintenance plus lourdes et délicates et minimiser le surcoût économique qui en résulte.

La seconde méthode, appelée recyclage hétérogène, consiste, au contraire, à séparer la gestion des actinides mineurs de celle du plutonium et de l'uranium. Le combustible standard et, par conséquent, les usines de fabrication, ne sont pas affectés par la gestion des actinides mineurs. Ces derniers sont concentrés dans des assemblages spécifiques du cœur du réacteur, appelés « cibles », et sont fabriqués voire retraités dans des usines dédiées. Le flux de métal lourd (actinides) dans les usines est ainsi limité aux seuls flux d'actinides mineurs, ce qui permet de concevoir des usines plus compactes et mieux adaptées aux problèmes technologiques liés à la manipulation de l'américium et du curium. *A contrario*, un gros effort de R&D est nécessaire pour concevoir ces nouveaux objets et les qualifier au même niveau que le combustible standard.

Les études réalisées en France sur la gestion des déchets radioactifs à vie longue ont fait une place prépondérante aux cibles composites [2]. Les actinides mineurs, toujours sous leur forme oxyde, la plus stable et la plus facile à manipuler, sont mélangés à une matrice inerte, du point de vue neutronique, mis en forme et frittés sous forme de pastilles (fig. 101), comme pour un combustible standard. L'optimisation du composite est une étape longue, requérant des essais d'élaboration et de compatibilité des matériaux, des mesures de propriétés, des tests en réacteur destinés à maîtriser et mieux comprendre son comportement sous irradiation. Pour ne citer que les phénomènes ayant un impact significatif sur le dimensionnement des cibles et leur performance, on notera :

1. La forte production d'hélium, produit de la décroissance alpha du curium 242, pouvant engendrer un fort gonflement s'il reste occlus dans la matrice, ou une pression additionnelle de gaz dans le **plenum*** s'il est relâché ;

2. l'endommagement de la matrice par les neutrons rapides, le recul des fragments de fission et les particules alpha produites par les réactions nucléaires de décroissance, d'où une modification des propriétés du combustible, notamment une forte dégradation des propriétés thermiques ;

3. l'interaction chimique combustible/gaine ;

4. l'interaction mécanique combustible/gaine.

Après avoir exploré une large palette de matériaux pouvant jouer potentiellement le rôle de matrice inerte, telles que des nitrures (ZrN, TiN) ou des métaux réfractaires (Mo, Cr), on oriente aujourd'hui le choix des matrices inertes vers des matériaux oxydes, à structure cubique, comme le spinelle, la magnésite, le YAG ou la zirconie stabilisée à l'Yttrium, offrant globalement des propriétés thermo-mécaniques et chimiques et un comportement sous irradiation acceptables. Les composés d'actinides, quant à eux, évoluent vers des solutions solides cubiques complexes, telles que $(An,Zr,Y)O_{2-x}$ ou Am_2ZrO_7 , présentant potentiellement une meilleure stabilité sous irradiation et un moindre pouvoir corrodant que les dioxydes simples de structure fluorine. Enfin, la microstructure du composite à « macro-masses » pour laquelle les composés d'actinides mineurs sont répartis de façon homogène

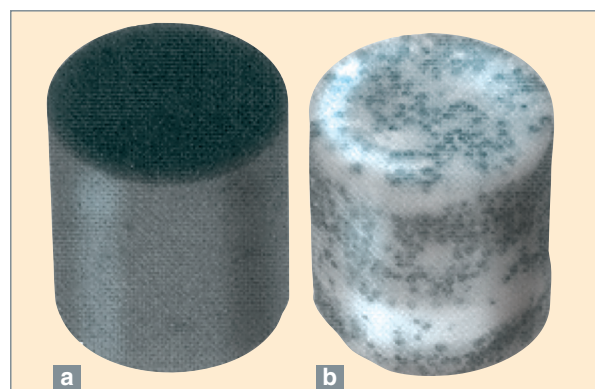


Fig. 101. pastille de combustible standard (a) et de combustible composite (b) pour la transmutation. Le combustible composite est ici composé d'une matrice inerte de spinelle (en blanc) et de macro-masses de composé d'oxyde d'actinides (en noir).

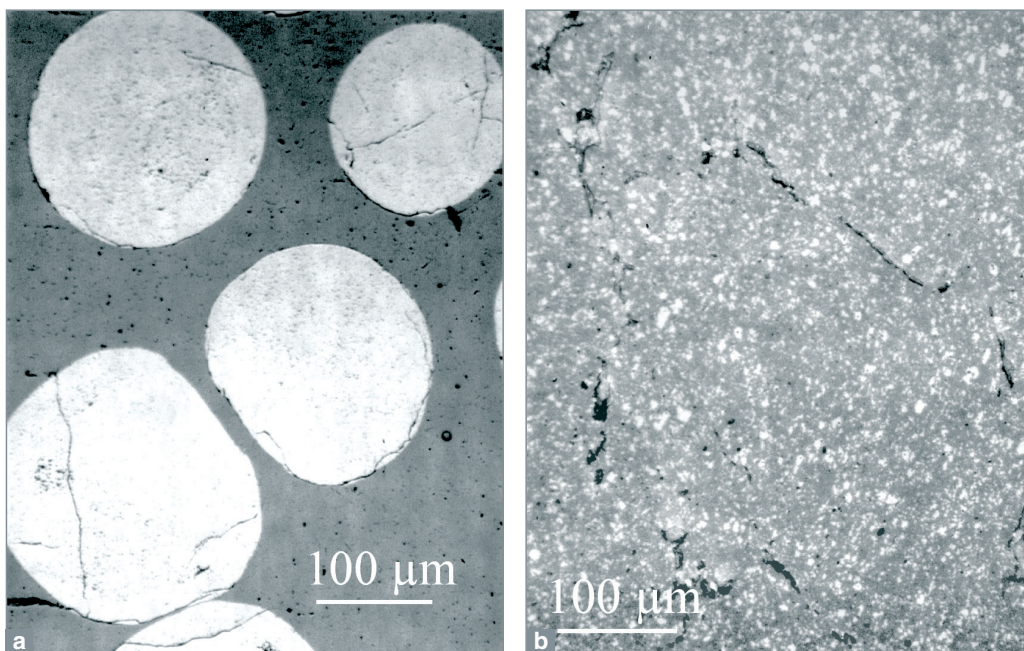


Fig. 102. Microstructures comparées d'un combustible composite à « macro-masses » (a) et « micro-dispersé » (b). La matrice inerte (en gris) du composite à macro-masse subit un moindre endommagement par les fragments de fission. La zone d'endommagement est localisée sur une dizaine de microns seulement en périphérie des microsphères, alors qu'elle recouvre l'ensemble de la matrice pour le composite microdispersé.

dans la matrice inerte sous forme de microsphères d'une centaine de microns environ permet de limiter les dégâts d'irradiation de la matrice à quelques microns autour des microsphères (fig. 102).

Le comportement sous irradiation de ces différentes matrices a d'abord fait l'objet d'études par des irradiations aux ions et aux neutrons. Le comportement en réacteur de ces cibles est ensuite étudié par plusieurs irradiations expérimentales à Phénix ou dans des réacteurs thermiques expérimentaux, ce qui a permis d'identifier et d'observer les principaux phénomènes intervenant en pile dans ces cibles, notamment le comportement des produits de fission et de l'hélium et les interactions entre le composé d'actinide et la matrice inerte, en fonction des matériaux utilisés, des quantités d'actinides contenues, de la gamme de température dans laquelle on le fait fonctionner, et du taux de combustion ou de transmutation visé.

Ce programme se poursuit ; on attend de ces structures optimisées une bonne stabilité dimensionnelle, même sur de très longues durées d'irradiation, ce qui permettrait d'envisager des taux de transmutation très élevés, supérieurs à 90-95 %. Dans ces conditions, on pourrait imaginer un stockage définitif des cibles brûlées directement en sortie de réacteurs et éviter leur multirecyclage. Le cycle des cibles en serait grandement simplifié.

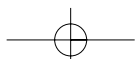
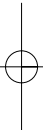
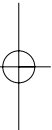
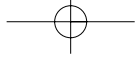
Dans le cadre de la nouvelle loi du 26 juin 2006 sur les déchets nucléaires, les études s'orientent désormais vers le recyclage homogène des actinides mineurs dans les RNR du futur à caloporteur gaz ou sodium, mais avec un combustible nourricier qui, suivant les types de réacteur, pourrait être un oxyde, un carbure ou un nitrure d'actinides, ces deux derniers présentant une meilleure densité en atomes lourds que le combustible standard MOX.

En parallèle, de nouvelles cibles sur support d'oxyde d'uranium plutôt que de matrice inerte sont également à l'étude. Ces cibles, placées dans la couverture fertile du réacteur, permettraient à la fois la transmutation des actinides et un bon contrôle de la physique du cœur, tout en réduisant les risques de prolifération.

► Références

- [1] J.-F. BABELOT ET N. CHAUVIN, « *Joint CEA/ITU synthesis report of the experiment SUPERFACT 1* », rapport JRC-ITU-TN-99/03, 1999.
- [2] *Les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue – Recherche et résultats : Axe 1 – Séparation et transmutation des radionucléides à vie longue* (dossier final décembre 2005 diffusé en mars 2006 par DEN/DDIN/DPRGD).

Sylvie PILLON,
Département d'études des combustibles



Le combustible à particules

Le concept de combustible à particules remonte à la fin des années 1950. On envisageait alors, pour les réacteurs à neutrons thermiques et parallèlement aux études sur les réacteurs à Uranium Naturel Graphite Gaz (UNGG) ou Magnox, en Angleterre, d'étudier un combustible formé d'uranium finement dispersé dans une matrice conductrice de graphite, notamment, pour améliorer les échanges entre le caloporteur gazeux et le combustible. Le concept a ensuite évolué vers des systèmes de réacteur à caloporteur gazeux plus chaud.

De l'idée initiale au concept de particule TRISO avancée

Les concepts de combustibles à particules dispersées et les procédés de fabrication associés ont ensuite notablement évolué suivant les projets de réacteurs. La grande innovation suivante a été d'enrober les particules de matière fissile ou fertile, de taille millimétrique, de deux couches de carbone obtenues par pyrolyse d'un précurseur carboné à haute température : la première, poreuse, destinée à servir de **plénum*** pour les gaz de fission, la seconde, dense, destinée à assurer le confinement de la particule combustible (particule BISO, fig. 103).

Afin d'améliorer l'étanchéité des particules contenant la matière fissile, le concept de particules TRISO a ensuite été développé. Cette particule est formée de trois couches de

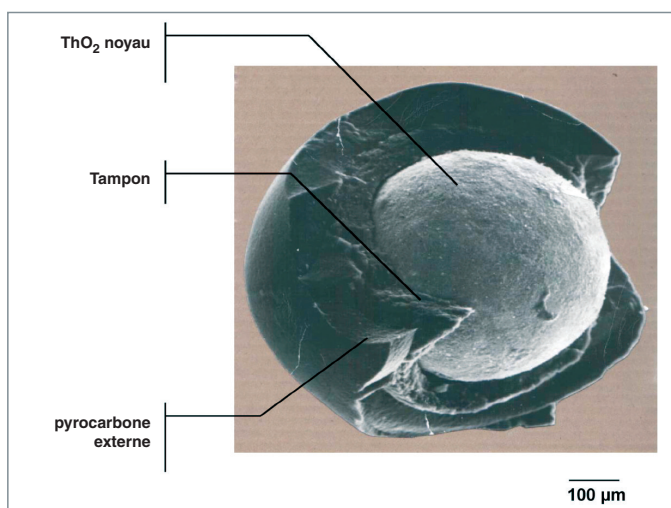


Fig. 103. Fractographie d'une particule ThO_2 BISO.

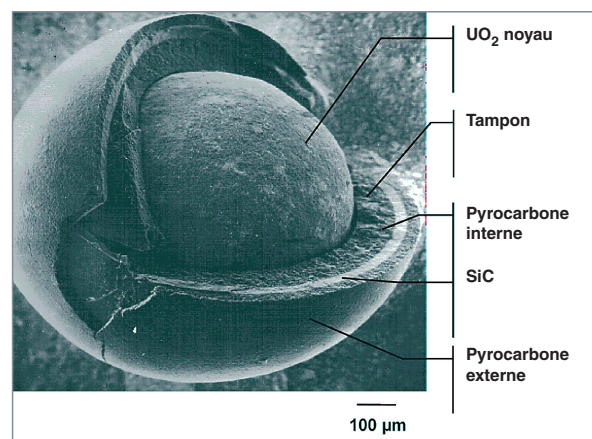


Fig. 104. Fractographie d'une particule UO_2 -TRISO-SiC.

pyrocarbone isotrope (d'où le nom de particules TRISO) dont deux prennent en sandwich un matériau céramique permettant d'assurer une meilleure étanchéité à la particule. Le matériau alors retenu, qui a fait ses preuves depuis, est le carbure de silicium SiC : la particule HTR-TRISO-SiC était née (fig. 104). En termes de comportement en réacteur, qui est décrit, par ailleurs, dans cette même monographie (voir chapitre « Comportement sous irradiation des combustibles à particules »), cette particule TRISO, fruit de nombreuses années de recherche, est une invention géniale, notamment parce que :

- Le concept de combustible dispersé, associé à la maîtrise du **rapport de modération***, permet une bonne maîtrise du spectre neutronique (et des effets d'**autoprotection***) ;
- la grande surface spécifique des particules contenant les isotopes fissiles permet un bon échange thermique avec la matrice de graphite et ensuite l'hélium caloporteur ;
- le combustible entièrement réfractaire permet un fonctionnement à haute température, ce qui est favorable au rendement de conversion et permet d'encaisser une éventuelle perte de fluide caloporteur ;
- la forme sphérique des particules donne aux couches de revêtement une grande résistance mécanique, ce qui permet d'atteindre des taux de combustion élevés.

Caractéristiques des particules de référence allemandes d'après [1]

Noyau UO_2	PyC poreux (buffer)	PyC dense Interne	SiC Externe	PyC dense
Diamètre 500 μm	95 μm	40 μm	35 μm	35 μm
10,9 g/cm ³	1,0 g/cm ³	1,9 g/cm ³	3,20 g/cm ³	3,20 g/cm ³
Dmax/Dmin = 1,07		BAF = 1,06		BAF = 1,02
Taux de particules défectueuses : 1,5 10 ⁻⁶				

Les procédés d'élaboration des noyaux

Les procédés d'élaboration du noyau combustible fissile ou fertile ont notablement évolué depuis l'origine, suivant les projets et la connaissance des procédés de fabrication. Le procédé initialement mis en œuvre dans le cadre du programme Peach Bottom, pour les noyaux de type UC_2 , ThC_2 ou $U.ThC_2$, était la fusion sous vide à haute température (supérieure à 2 500 °C) d'un mélange de poudres de carbone et d'oxydes d'uranium et/ou de thorium pour former le dicarbure UC_2 , ThC_2 ou $U.ThC_2$ [2]. Ce procédé a ensuite été transféré en France à la fin des années 1970, dans le cadre de la collaboration française avec le projet DRAGON, et mis en œuvre à la Société Française des Éléments Catalytiques (SFEC) de Bollène. Il a permis d'obtenir une bonne qualité de noyaux, notamment pour des gros noyaux (supérieurs à environ 800 microns) et des résultats intéressants dans le cadre d'un concept à noyaux poreux [3]. Ce procédé a été mis en œuvre par le CEA pour l'élaboration de noyaux de thorium, jusqu'à l'arrêt des activités dans ce domaine, au début des années 1980. Par la suite, compte tenu des développements allemands et de la meilleure qualité des noyaux obtenus, les procédés de type sol-gel ont supplanté les autres [4] lorsque des chercheurs Italiens de la société SNAM proposèrent un pseudo-procédé sol-gel appelé procédé GSP (*Gel Supported Precipitation*). Ce procédé allait révolutionner les travaux dans ce domaine et être adopté par de nombreux chercheurs et industriels [4]. GA allait l'utiliser pour la fabrication des noyaux ThO_2 pour FSV. Les Allemands de NUKEM et FZJ allaient développer leur propre variante pour le combustible de l'AVR, puis du THTR et ensuite pour le développement de la particule UO_2 -TRISO-SiC [1]. Aujourd'hui, c'est le procédé de référence pour la fabrication des noyaux d' UO_2 .

Le principe du procédé, représenté sur la figure 105, consiste tout d'abord à préparer un pseudo-sol (appelé égale-

ment « *broth* ») à partir d'une solution initiale de nitrate de l'actinide considéré (uranium, thorium ou plutonium). Ce pseudo-sol est obtenu en ajoutant divers additifs, liés au savoir-faire du procédé, dont un polymère organique soluble qui gélifiera lors de la dispersion des gouttes et servira de support à la précipitation de l'actinide. La formation de billes sphériques est ensuite obtenue par dispersion de gouttes calibrées

dans un gaz contenant de l'ammoniac qui provoque la gélification du polymère et la précipitation de l'actinide en surface de la goutte. Cette gélification externe (nom quelquefois donné au procédé) permet de maintenir la forme sphérique de la goutte, qui tombe ensuite dans une solution d'ammoniaque pour terminer la gélification au cœur de la sphère. Les sphères gélifiées, qui vieillissent quelque temps dans l'ammoniaque, sont ensuite lavées et séchées pour extraire principalement le nitrate d'ammonium et l'eau. Les traitements thermiques ultérieurs de calcination, réduction et densification permettent de transformer les sphères en noyaux de l'actinide considéré.

Un procédé sol-gel alternatif au procédé GSP peut également être envisagé pour la fabrication des noyaux : il s'agit du procédé de gélification interne à l'HMTA. Le principe de ce procédé ne consiste plus à réaliser l'opération de gélification/précipitation par de l'ammoniaque qui diffuse de l'extérieur vers l'intérieur de la sphère, mais à l'aide d'un précurseur interne, l'HexaMéthylTetraAmine (HMTA), qui libère de l'ammoniaque lors d'une augmentation de température de 0 à 80 °C environ. Ce procédé n'a pas connu de développement industriel, mais il a été mis en œuvre à une échelle pilote. Il est, en particulier,

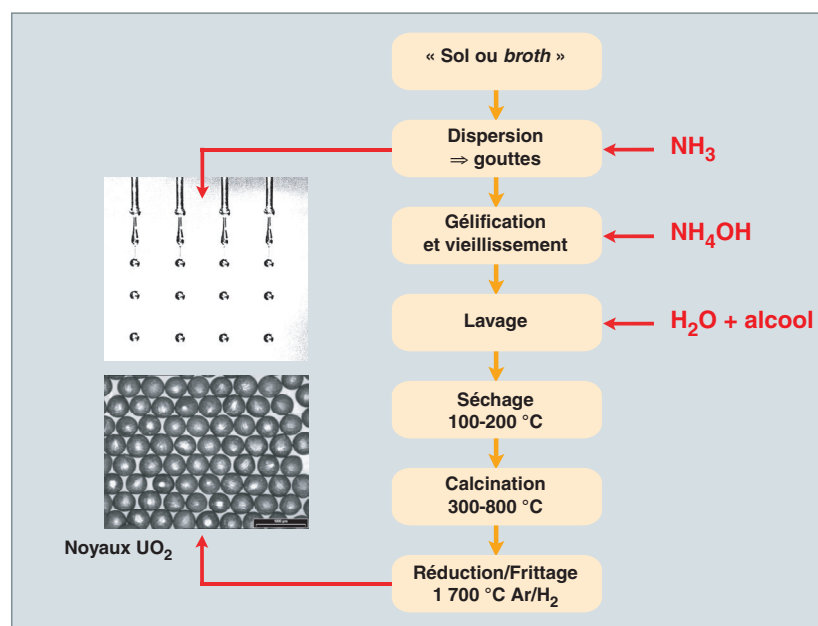


Fig. 105. Schéma de principe du procédé Sol-Gel GSP.

utilisé à l'ORNL aux États-Unis pour l'élaboration de noyaux UCO. Les avantages et inconvénients réciproques de ces deux procédés ont longtemps fait débat depuis les années 1970 [4]. On peut simplement indiquer que les deux procédés semblent permettre d'obtenir des qualités de noyaux similaires pour des diamètres compris entre 200 et 600 μm environ et que le choix du procédé porte plutôt sur des critères de mise en œuvre du procédé, en particulier liés à la préparation des précurseurs et à la gestion des effluents produits.

Le revêtement des particules par dépôt en phase vapeur

Le principe du dépôt chimique en phase vapeur (CVD : *Chemical Vapor Deposition*) en lit fluidisé par décomposition d'un précurseur gazeux s'est rapidement imposé (fig. 106), même si quelques études préliminaires au projet DRAGON ont envisagé d'autres procédés. Ce type de procédé permet d'obtenir la qualité du matériau et l'homogénéité de dépôt recherchées, notamment par le brassage des particules et l'homogénéisation des transferts dans le lit fluidisé. Pour les dépôts de pyrocarbones, les premiers précurseurs utilisés étaient des alcanes (méthane, éthane, propane...), mais, compte tenu des températures élevées pour réaliser leur craquage (de l'ordre de 1900 °C), les études se sont orientées, par la suite, vers la décomposition des alcènes et des alcynes. Le procédé de référence, actuellement mis en œuvre, est le craquage de l'acétylène (C_2H_2) pour le buffer et celui du propylène (C_3H_6) pour les pyrocarbones denses (externe et interne). Les réactions de décomposition sont réalisées dans un domaine de température de l'ordre de 1200 à 1400 °C et avec une vitesse moyenne de dépôt de l'ordre de la dizaine de $\mu\text{m}/\text{min}$ ($\leq 50 \mu\text{m}/\text{min}$) pour le buffer et de quelques $\mu\text{m}/\text{min}$ ($\leq 5 \mu\text{m}/\text{min}$) pour les pyrocarbones denses. La différence de vitesse s'explique par les propriétés recherchées pour chaque couche : pour le buffer, on cherche une couche d'accommodation, peu dense, que l'on peut déposer rapidement, alors que pour les autres pyrocarbones, on recherche une couche dense, isotrope et avec une bonne tenue mécanique, qui nécessite une vitesse de dépôt plus lente. Pour le dépôt de SiC, le Méthyl-Trichloro-Silane (MTS : CH_3SiCl_3), sous-produit de l'industrie des silicones et précurseur fréquemment utilisé pour les dépôts de SiC, s'est rapidement imposé. La simple décomposition thermique de MTS ne permet pas la formation de SiC pur. Il est obtenu sous la forme cubique β -SiC stœchiométrique, par ajout de carbone libre sous hydrogène au MTS. La teneur en H_2 doit être ajustée afin d'éviter la formation de silicium [5]. Les conditions moyennes de dépôt sont : un rapport MTS/ H_2 de 1 à 5 % molaire, une température de 1600 °C environ et une vitesse de dépôt $\leq 1 \mu\text{m}/\text{min}$.

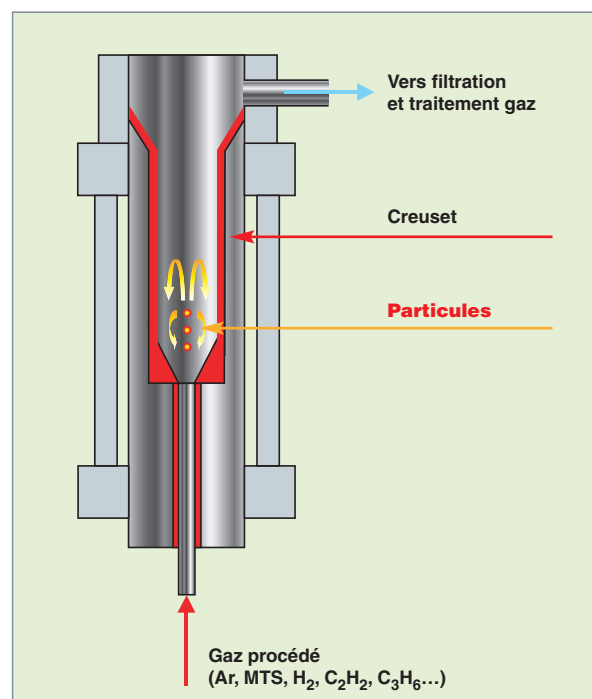


Fig. 106. Schéma de principe du four CVD.

Différentes technologies et tailles de four ont été mises en œuvre, par exemple : four à fond conique ou plaque poreuse, injecteur central ou multi-injection, chauffage résistif ou inductif, fonctionnement en batch ou continu, fours de diamètre interne de creuset de 2" ($\approx 50 \text{ mm}$), 3" ($\approx 75 \text{ mm}$), 5" ($\approx 130 \text{ mm}$), 240 mm et 400 mm [1,3,5]. Les fours de 2" et 3" sont généralement utilisés pour les installations de laboratoire ($< 1 \text{ kgU}$) et les fours de 130 à 400 mm ont été mis en œuvre pour des installations pilotes ou industrielles. Néanmoins, la taille des fours et le mode de fonctionnement dépendent également des caractéristiques recherchées pour les particules. Pour les petits noyaux ($\leq 300 \mu\text{m}$), le fonctionnement en continu est très difficile, voire impossible (à cause de l'épaisseur des couches envisagée). En effet, dans ce cas, l'expansion volumique du lit fluidisé est très importante, ce qui nécessite une réduction du nombre de particules pour les derniers dépôts. À titre d'exemple, pour des noyaux de 300 mm sur lesquels on désire déposer les couches suivantes : buffer 95 mm, PyC (interne et externe) 40 μm et SiC 35 μm , l'expansion volumique est d'un facteur 13 environ, ce qui correspond à une hauteur de lit finale d'environ 1 m 30 si l'on a une hauteur initiale de 10 cm !

La réalisation des éléments combustibles : le compactage des particules

La réalisation de l'élément combustible consiste à disperser les particules dans une matrice de graphite. Cette matrice est, soit cylindrique, dans le cas du concept américain à « blocs

prismatiques et compacts », soit sphérique, dans le cas du concept allemand à « boulets ». La hauteur d'un compact est de 50 mm environ pour un diamètre de l'ordre de 10 mm. Un compact contient environ 7000 particules. Le diamètre des boulets allemands est de l'ordre de 60 mm. Il est formé d'une zone externe corticale d'environ 5 mm d'épaisseur ne contenant pas de particules et d'une partie interne qui contient environ 12 000 particules. Dans les deux cas, l'objectif du procédé est d'obtenir une distribution homogène de particules dans la matrice de graphite, sans endommager les particules lors de la fabrication et des manipulations ultérieures. Plusieurs procédés ont été étudiés et mis en œuvre. Les deux procédés de référence sont : « l'injection à chaud », utilisée notamment par les Américains pour le combustible de FSV et « le pressage à chaud », utilisé notamment par les Allemands pour la fabrication des boulets de l'AVR et du THTR, et par les Français du CEA et de la société CERCA pour la fabrication d'éléments combustible dans le cadre des collaborations DRAGON et GA dans les années 1970 [3, 5]. La différence entre les deux procédés réside principalement dans la méthode de fabrication de la préforme, préalablement aux traitements thermiques de consolidation et de carbonisation. Cette préforme contient les particules combustibles mélangées à de la poudre de graphite et à des additifs de mise en forme. Dans le cas du procédé par injection, la préforme est réalisée par injection à 150-200 °C dans un moule approprié. Dans le cas du procédé par pressage, la préforme est réalisée par pressage du mélange des constituants à une température de l'ordre de 100 à 150 °C. Pour ces procédés, il existe plusieurs variantes, suivant le type d'objet réalisé (compact cylindrique ou boulet⁶), mais également suivant le protocole de préparation des mélanges (par exemple, sur-enrobage des particules combustibles par du graphite, préalablement au mélange, pour réaliser la préforme). Le schéma de la figure 107 résume les différentes étapes des procédés de compactage.

La caractérisation des particules et des éléments combustibles

La caractérisation des particules et des éléments combustibles (compacts ou boulets) représente un volet important du processus de fabrication du combustible HTR, notamment en terme de coût [6]. Cela s'explique par la forme du combustible qui nécessite de caractériser un grand nombre de petits objets (particules millimétriques) et par le type de techniques utilisées dans les années 1970 qui nécessitaient souvent beaucoup de main d'œuvre.

Aujourd'hui, un des défis pour le développement industriel de ce type de combustible est de mettre en œuvre des méthodes

6. Pour les boulets et les compacts, les méthodes de pressage sont différentes compte tenu de la géométrie des objets. De plus, pour les boulets, compte tenu de la zone externe corticale, le pressage est réalisé en deux étapes : pressage de la zone centrale contenant les particules, puis pressage de la zone corticale.

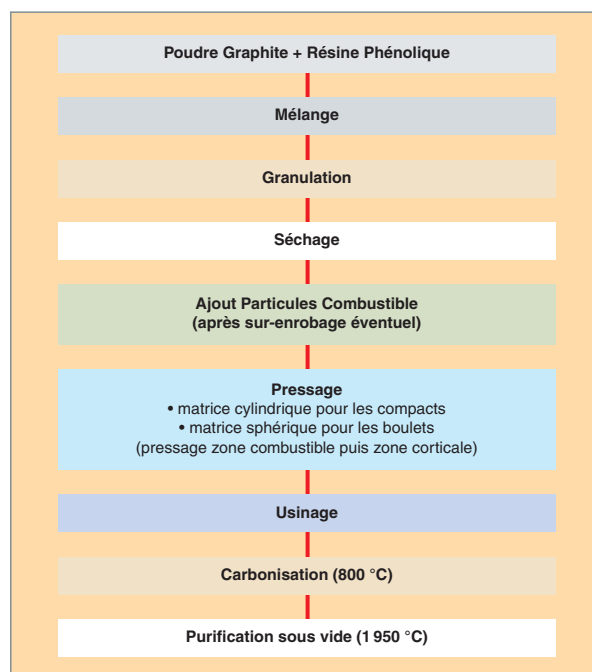


Fig. 107. Schéma de principe du compactage d'après [6].

plus automatisées permettant de caractériser rapidement un nombre représentatif de particules et d'éléments combustibles (compact ou boulet).

Dans les développements actuels, qui sont globalement au stade laboratoire ou pilote, les techniques employées qui restent destructives sont notamment [7, 8, 9] :

- l'analyse optique automatisée par observation directe pour caractériser le diamètre et la sphéricité des noyaux (et éventuellement des particules) ;
- l'analyse optique automatisée de coupes métallographiques pour mesurer l'épaisseur des couches ;
- l'analyse de la réflectance photométrique optique pour estimer l'isotropie du pyrocarbone dense (interne et externe) ;
- l'utilisation de colonne de flottation pour mesurer la densité des couches de pyrocarbone et de SiC, avec recherche d'une méthode alternative non destructive et plus facilement automatisable ;
- la méthode du « *burn-leach* » test⁷ pour estimer le taux de couches de SiC défailantes, avec recherche d'une méthode alternative non destructive et plus facilement automatisable.

7. Le « *burn-leach* » consiste à oxyder thermiquement les particules ou les éléments combustibles, à effectuer une attaque acide pour mettre en solution l'actinide, puis à doser le taux d'actinide et ainsi à déterminer le taux de particules défailantes.

De la particule HTR aux combustibles VHTR et GFR : l'installation GAIA du CEA/Cadarache

Afin de se réappropriier la technologie de fabrication des particules HTR et d'étudier la fabrication des combustibles de type VHTR et GFR, le CEA, en partenariat avec AREVA, développe au CEA/Cadarache une installation appelée GAIA, d'étude et de fabrication de particules revêtues [9].

La démarche d'étude autour de cette installation GAIA s'articule autour de plusieurs axes :

- Restaurer la connaissance passée du CEA, notamment en reconfigurant les fours CVD du CEA/Grenoble issus des collaborations avec le projet DRAGON et General Atomics (GA) dans les années 1960-1970 pour le revêtement des particules ;
- étudier les processus élémentaires intervenant dans les procédés de fabrication, afin d'identifier les étapes clés et les paramètres déterminants ;
- réaliser une installation de R&D polyvalente, appelée GAIA, permettant de fabriquer et de caractériser des particules de référence UO_2 -TRISO-SiC, mais également des particules plus innovantes pour les applications VHTR et GFR.

À titre d'exemple, les particules innovantes envisagées pourront être des particules TRISO-ZrC (le ZrC, qui présente une température de fusion plus élevée que le SiC, est donc plus favorable pour les applications VHTR) ou des particules à base de carbure ou de nitrure d'uranium (plus proches des concepts actuellement envisagés pour le GFR).

La restauration des fours CVD du CEA/Grenoble, *i.e.*, du four de 3" issu du projet DRAGON et du four de 5" issu de la collaboration GA, ont permis de retrouver la maîtrise de l'élabo-

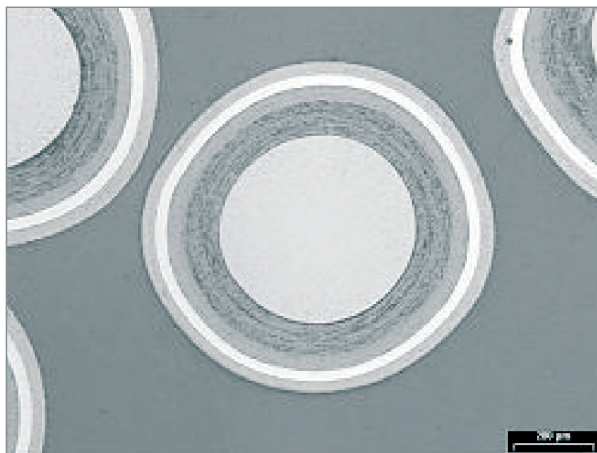


Fig. 108. Coupe polie de particules TRISO.

ration de particules TRISO-SiC (fig. 108). Compte tenu de l'arrêt des installations permettant la mise en œuvre de l'uranium au CEA/Grenoble, ces études ont été réalisées sur noyaux de zircon stabilisée à l'Yttrium ($Y-ZrO_2$) simulant le noyau d' UO_2 . Elles ont permis la définition de la future installation GAIA et contribueront à son démarrage. Parallèlement, des travaux de modélisation et d'identification des mécanismes élémentaires sont entrepris en collaboration avec des laboratoires universitaires, afin de comprendre les phénomènes de transferts dans les fours CVD et les mécanismes de dépôts des différentes couches. Ces études de compréhension et de modélisation sont couplées à une caractérisation fine des matériaux, afin de pouvoir identifier les liens entre processus de fabrication et propriétés d'usage du matériau élaboré.

En ce qui concerne l'élaboration des noyaux, le procédé de référence de type sol-gel GSP a été retenu pour l'installation GAIA. Les raisons principales de ce choix sont essentiellement un retour d'expérience industriel plus important (procédé allemand de fabrication des noyaux UO_2), une connaissance CEA de ce type de procédé et l'identification d'exutoires pour le traitement des effluents issus du procédé. Compte tenu de la modularité du procédé, si nécessaire, l'alternative de l'étude du procédé par gélification interne pourrait également être envisagée. La démarche d'acquisition de la maîtrise du procédé a démarré par une capitalisation de la connaissance passée (interne et externe CEA), puis par la réalisation d'essais sur des petites quantités de matière uranifère. Ces essais, réalisés pour les différentes étapes du procédé, ont permis d'élaborer, à la fin de l'année 2003, les premiers noyaux d' UO_2 conformes aux spécifications recherchées. Néanmoins, les études se poursuivent afin de mieux comprendre les processus de fabrication et, ainsi, définir un domaine de fonctionnement optimal permettant d'obtenir le matériau recherché de façon reproductible et avec un bon rendement, pour une transition future à l'installation GAIA.

En ce qui concerne le revêtement des particules, les caractéristiques globales de l'installation GAIA sont, notamment, l'utilisation d'un four de type 3" dimensionné, de façon à pouvoir accueillir différents creusets de diamètre interne de 2 à 3". Ce dimensionnement permettra de réaliser des lots de 50 à 500 g U, voire 1 kg U suivant le diamètre des noyaux mis en œuvre. L'installation sol-gel est également dimensionnée pour réaliser ce type de batch. Le chargement et le déchargement du four sont prévus en boîte à gants (BAG) sous atmosphère inerte (argon ou azote), de façon à pouvoir manipuler des produits tels que des noyaux de carbure ou de nitrure à l'abri de l'air humide ambiant (fig. 109). Le four est également conçu de façon à pouvoir accueillir un dispositif de mise en œuvre d'un précurseur de ZrC.

Parallèlement, des méthodes de caractérisation des noyaux et particules sont en cours de développement soit en s'inspirant de méthodes utilisées par le passé et actualisées, soit en évaluant de nouvelles techniques.

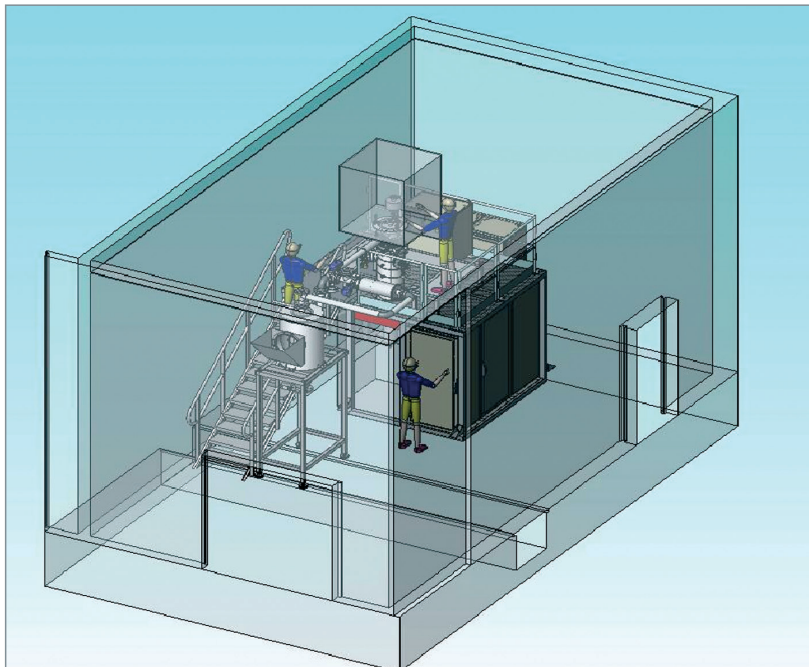


Fig. 109. Ensemble Four CVD Installation GAIA.

Les études concernant le compactage sont menées en partenariat avec la société CERCA, qui procède à la construction et à la mise en œuvre d'une installation de compactage. L'ensemble, plate-forme GAIA et compactage CERCA, permettra, à terme, de maîtriser la fabrication du combustible VHTR et de comprendre les processus clés associés.

► Références

- [1] W. HEIT, H. HUSCHKA *et al.*, « *Status of Qualification of High-Temperature Reactor Fuel Element Spheres* », Nuclear Technology, 69 (April 1985), 44-53.
- [2] C. MOREAU, « *Fabrication de combustibles enrobés* », Technique de l'ingénieur, Génie nucléaire, vol. BN3 n° B3640 (1983).
- [3] C. MOREAU, A. BALLAGNY, R. BUJAS, J. HOLDER, R. RANC et R. SOULHIER, « *Fabrication et Performances du Combustible Français pour Réacteurs à Haute Température* », IAEA Symposium (IAEA CN 36/270), « Nuclear power and its fuel cycles », Salzburg (May 1977).
- [4] IAEA Symposium (Technical Report 161, 1974), « *Panel on sol gel processes for fuel fabrication* », Vienna (May 1973).
- [5] K. MINATO and K. FUKUDA, « *Chemical Vapor Deposition of Silicon Carbide for Coated Fuel Particles* », J. Nucl. Mat., 149 (1987), 233-246.
- [6] P. GUILLERMIE et G. HARBONNIER, « *Technologie des combustibles pour RHT* », Conférence SFEN, Paris (France), 10-11 décembre 2002.
- [7] K. SAWA, S. SUZUKI and S. SHIOZAWA, « *Safety criteria and quality control of HTR Fuel* », Nuclear Eng. And Design, **208** (2001), 305-313.
- [8] F. CHAROLLAIS, B. BIANCHINI et C. PERRAIS, « *Caractérisation de combustibles HTR par Analyse d'Images* », Matériaux-2002, Tours (France), 21-25 octobre 2002.
- [9] F. CHAROLLAIS, C. PERRAIS, M. PEREZ, S. FONQUERNIE, C. ABLITZER, A. DUHART, O. DUGNE, P. GUILLERMIE et G. HARBONNIER, « *CEA & AREVA HTR fuel particles manufacturing an characterization R&D program* », ATALANTE-2004, Nîmes (France), June 21-25, 2004.

Christophe PERRAIS,

Département d'études des combustibles

Comportement sous irradiation des combustibles à particules

Le combustible à particules : divers modes de défaillance pour un objet très résistant

Le combustible à particules doit être capable de supporter des hautes températures et des taux de combustion importants, sans relâcher beaucoup de produits de fission. Ce relâchement des produits de fission par l'élément combustible, compact ou boulet, est dû principalement aux particules rompues. Toutefois, la perméation des produits de fission au travers des couches de céramiques entourant le noyau étant activée thermiquement, les particules intègres ne sont pas complètement étanches à certains produits de fission, surtout dans les situations incidentelles conduisant à une élévation de la température du cœur.

Le cœur d'un réacteur à combustible à particules comporte quelques milliards de particules, chacune d'elles assurant sa propre fonction de confinement. La problématique est donc de pouvoir montrer, d'une part, que seules quelques-unes sont déjà rompues avant l'irradiation (de l'ordre de 10^{-5}), que peu rompent en régime nominal (de l'ordre de 10^{-4}) ou en conditions incidentelles (doublement soit 2×10^{-4}), et, d'autre part, que la perméabilité des particules intègres reste acceptable en toutes conditions. Pour faire ces évaluations, il faut ajouter que la rupture des couches de céramique assurant le confinement obéit à une distribution statistique de Weibull et qu'il n'y a pas de limite à rupture bien définie, comme pour les gaines métalliques.

La principale barrière de confinement est la couche de SiC, qui est, d'une part, la barrière de diffusion efficace de la majorité des produits de fission, et, d'autre part, la structure supportant la pression produite par les gaz de fission relâchés par le noyau et présents dans les porosités ouvertes du tampon en pyrocarbone (*buffer*).

Les couches de pyrocarbone dense, en dehors de leur utilité pour faciliter la fabrication et de leur rôle de barrière de diffusion additionnelle pour les produits de fission, jouent également un rôle majeur dans la tenue mécanique de la couche de SiC. En effet, ces couches de pyrocarbone, denses par rapport au *buffer* mais ayant néanmoins 15 à 20 % de porosité, se densifient sous irradiation par les neutrons rapides, la **fluence*** des neutrons rapides, d'énergie supérieure à 0,1 MeV pouvant atteindre plusieurs 10^{25} n.m⁻² dans un HTR (fig. 110). Accrochées au SiC, qui est très rigide, elles ne peuvent toutefois pas se densifier librement. Cela crée en leur sein des

contraintes circonférentielles de traction et, par réaction, des contraintes circonférentielles de compression dans la couche de SiC. Ces contraintes de compression retardent la mise en traction de la couche de SiC, sous l'effet de la pression des gaz de fission, retardant du même coup la rupture de celle-ci. Ces contraintes dans les couches de pyrocarbone sont relaxées par le **fluage*** d'irradiation. Celui-ci limite le niveau de contraintes dans les couches de pyrocarbone, limitant leur rupture en début d'irradiation. Ainsi, le bénéfice de la précontrainte de la couche de SiC par la couche de pyrocarbone interne ne peut être effectif que s'il y a une forte cohésion à l'interface entre ces deux couches et si la relaxation n'est pas totale. En contre-partie de cette cohésion, lorsqu'une fissure se développe dans la couche de pyrocarbone, la probabilité est grande que cette fissure se propage aussi dans la couche de SiC.

Qu'il s'agisse d'un « compact » (petit cylindre d'une dizaine de mm de diamètre pour une cinquantaine de mm de hauteur) ou d'un « boulet » (sphère d'environ 60 mm de diamètre), l'élément combustible doit posséder une distribution homogène des particules, pouvoir être manipulé sans occasionner de dommages aux particules et assurer un bon transfert thermique entre la particule et la matrice graphite qui l'entoure. La fabrication de l'élément combustible, par pressage ou injection, est une opération qui sollicite mécaniquement les particules. Le nombre de particules cassées ou abîmées (rupture

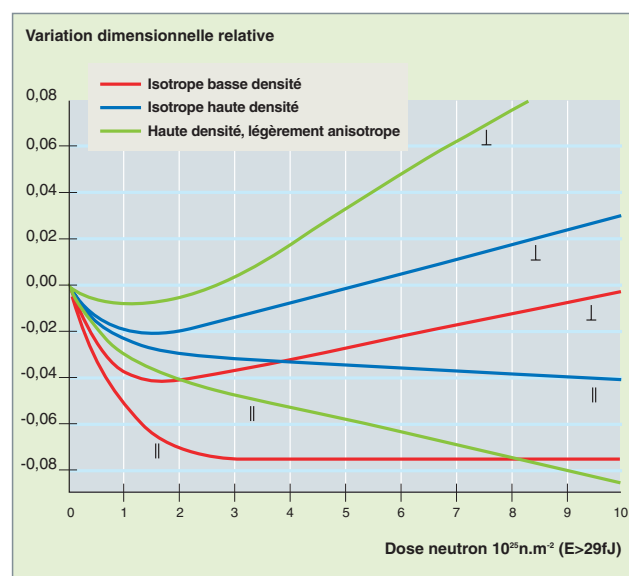


Fig. 110. Variations dimensionnelles de différents pyrocarbures dans les sens parallèle et perpendiculaire au plan de dépôt.

de la couche de pyrocarbone externe, par exemple) pendant les opérations de fabrication, a un impact direct sur le comportement en réacteur et, en particulier, sur le relâchement des produits de fission dans le circuit primaire.

La répartition des particules dans l'élément combustible, la densité de particules par élément combustible, la puissance par particule, sont des facteurs déterminants pour le comportement de l'élément combustible et les contraintes thermomécaniques, car ils conditionnent, en particulier, le gradient et le niveau de température à l'intérieur des particules. Ainsi, un « compact » est plus sollicitant qu'un boulet, car la densité de particules en son sein est plus importante (les blocs graphite occupent une place qu'il faut regagner, par ailleurs), avec une répartition moins homogène (les particules peuvent affleurer la surface externe du compact).

Sous irradiation, la matrice de graphite de l'élément combustible va se contracter. Sa variation dimensionnelle, proche de celle d'un graphite standard, est de l'ordre de 1 % en fin d'irradiation. Cette contraction peut solliciter mécaniquement les particules, principalement la couche de pyrocarbone externe, et peut entraîner un accroissement de température due à l'accroissement du jeu entre le bloc graphite et le compact.

En situation accidentelle de référence, la perte des systèmes de refroidissement peut amener la température du combustible jusqu'à 1600 °C. À cette température, la production de CO par réaction entre l'oxygène de l'UO₂ et le carbone du buffer est accélérée, ce qui augmente la pression dans la particule et donc sa probabilité de rupture. La quantité de CO produite à très haute température domine la quantité de PF gazeux pour les combustibles oxydes. En même temps, l'élévation de température accélère la diffusion des produits de fission vers le SiC et favorise la corrosion volumique du SiC par certains produits de fission (palladium), le rendant plus fragile. Il apparaît donc que le comportement de ce type de combustible est complexe et que les modes de ruine en réacteur sont nombreux (fig. 111).

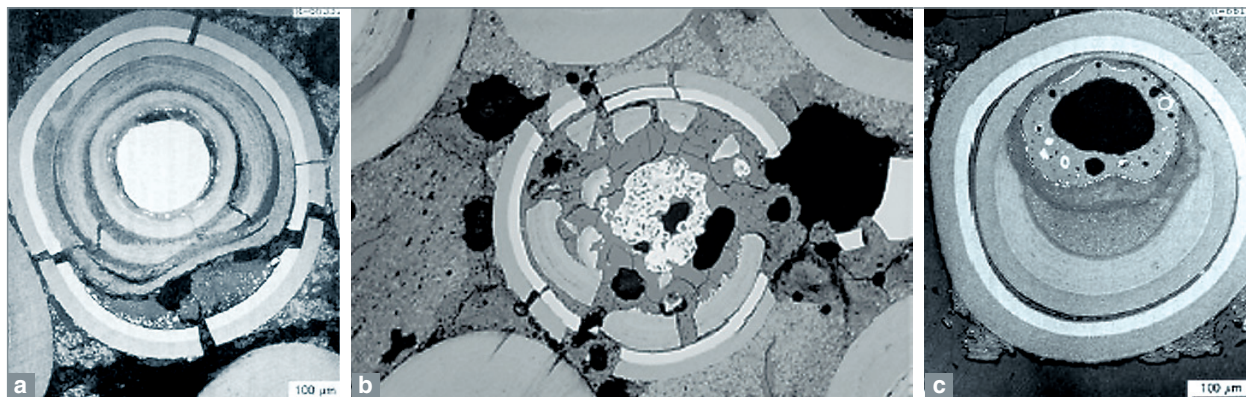


Fig. 111. Différents modes de ruine des particules. a) : Accumulation de PF ; b) : Suppression ; c) : Effet amibe L'effet amibe correspond au déplacement du noyau dans le buffer dû à un transport des atomes de carbone du buffer du côté chaud vers le côté froid à

L'effet amibe

La migration du noyau dans la particule combustible, connue sous le nom d'effet amibe, est reconnue comme un problème préoccupant pour des particules exposées à de forts gradients thermiques. Ce phénomène qui peut conduire à une destruction complète de la particule si le noyau atteint la couche SiC est fortement dépendant, d'une part, des trois paramètres de fonctionnement que sont la température du noyau, le gradient de température dans la particule et le taux de combustion, et, d'autre part, de la nature du matériau constituant le noyau [1]. Les premières observations de ce phénomène ont été faites aux États-Unis, dans les années 60, sur des combustibles carbures. Le mécanisme reconnu est une diffusion en phase solide du carbone sous gradient thermique. Des observations similaires de migration de noyau allant jusqu'à la rupture de la couche de SiC ont été faites dès les années 70 sur des particules à noyau oxyde. Dans ce cas, le mécanisme est plus complexe et n'est toujours pas bien établi. Il fait intervenir concurremment des déplacements de carbone du côté chaud vers le côté froid de la particule en phase vapeur par la présence des oxydes de carbone CO et CO₂ mais également une thermo-diffusion à l'état solide d'oxygène dans le noyau.

La distance de migration du noyau pour les combustibles oxyde et carbure est souvent représentée par une expression empirique du type :

$$x(t) = \int_0^t KMC(T) \frac{1}{T^2(t)} \frac{dT(t)}{dx} dt$$

dans laquelle KMC (T) représente le « coefficient de migration du noyau » dont la valeur est fonction du matériau constituant le noyau et de sa température d'irradiation.

Une importante base de données expérimentales existe aujourd'hui provenant d'expériences réalisées par différents organismes aux États-Unis, en Europe et en Russie. Des évaluations du coefficient de migration du noyau sous forme d'une relation d'Arrhénius ont été proposées principalement pour les oxydes (fig. 112).

l'intérieur de la particule soumise à un gradient thermique. L'effet amibe amène le noyau au contact du pyrocarbone dense et entraîne la rupture de la particule.

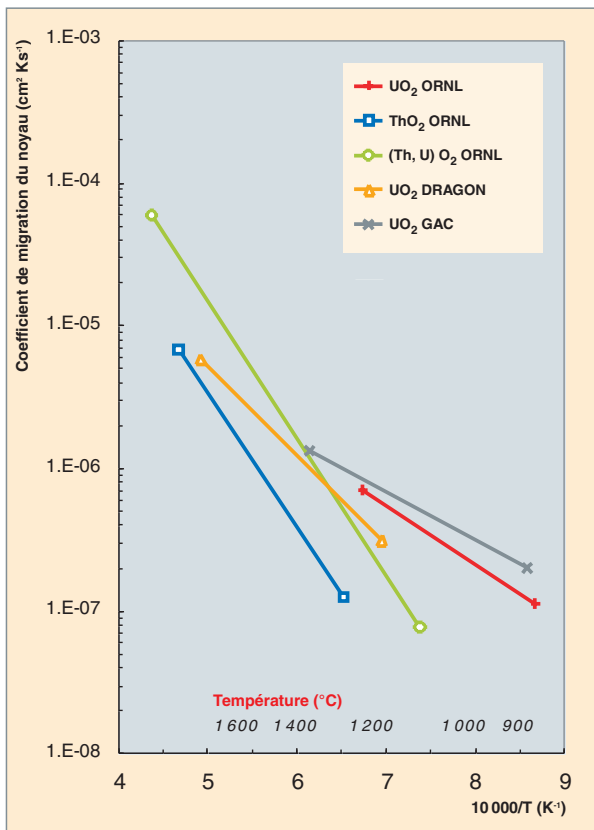


Fig. 112. Coefficient de migration du noyau, en fonction de la température.

Des déplacements significatifs de noyaux (quelques dizaines de microns) nécessitent des gradients thermiques très élevés au sein des particules (plusieurs milliers de degrés par cm). Ceux-ci ne sont, dans la plupart des cas, jamais atteints dans les éléments combustibles choisis pour les conceptions actuelles des réacteurs de puissance, qu'ils soient de type « à boulets » (répartition homogène du combustible et faible densité de puissance) ou « à cœur prismatique annulaire », tel que le projet GT-MHR de General Atomics.

Par ailleurs, comme l'un des vecteurs de transport du carbone est la présence d'oxydes de carbone dans l'atmosphère interne de la particule, l'utilisation de noyau oxycarbures à la place de l'UO₂, qui ne produisent pratiquement pas de CO, est souvent considérée comme une parade efficace à l'effet amibe.

Comportement et diffusion des produits de fission dans les combustibles à particules

Le relâchement de produits de fissions radioactifs hors des particules combustibles et des éléments combustibles des RHT constitue un des facteurs limitant la durée de vie de ce combustible en fonctionnement nominal et en conditions accidentelles.

Parmi ceux-ci, les gaz de fission jouent un rôle important ; si une partie demeure en rétention dans le noyau – fonction du niveau de température dans la particule et du taux de combustion – le reste est relâché dans le volume libre de la particule et la pressurise progressivement⁸. De plus, pour les particules à noyau UO₂, vient s'ajouter la présence des oxydes de carbone (CO/CO₂) formés par réaction de l'oxygène libéré par la fission avec le carbone du buffer. Afin d'éviter une rupture prématurée des couches denses et, en particulier, de la couche SiC, il convient de dimensionner correctement la particule en prévoyant, lors de sa fabrication, un volume tampon de taille suffisante, c'est-à-dire un rapport volume de buffer/ volume de noyau optimisé de manière à repousser au-delà du taux de combustion nominal une mise en tension réhibitoire de la couche SiC.

Une grande partie des produits de fission non gazeux reste retenue dans le noyau sous diverses formes : en solution dans la matrice, sous forme de phases oxydes séparées ou de précipités métalliques, ou encore de composés plus ou moins complexes de PF. Les plus volatils d'entre eux (Cs, I, Ag, par exemple) vont avoir tendance à diffuser au travers des différents couches de la particule. Il faut signaler que le passage des particules BISO utilisées pour les premiers combustibles des RHT aux particules TRISO a permis un gain très important en terme de rétention, grâce à l'excellente barrière de diffusion vis-à-vis de la plupart des produits de fission que constitue la couche SiC (fig. 113) [2].

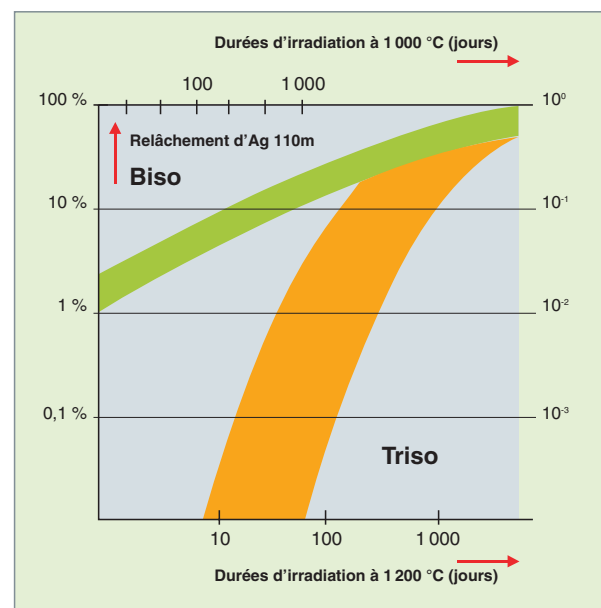


Fig. 113. Synthèse des mesures de relâchement d'Ag 110m issues d'irradiations de particules à noyau UO₂ à faible enrichissement en U 235 de types BISO et TRISO du réacteur expérimental DRAGON.

8. Une faible proportion des gaz de fission et des autres PF sont relâchés par recul direct dans le buffer. Pour une particule LEU TRISO classique dont le diamètre du noyau fait 500 microns, ce relâchement par recul représente 1,5% du total produit.

Les meilleurs résultats sur la rétention des PF ont été obtenus avec des particules **LEU**⁹ TRISO irradiées par les Allemands dans les combustibles sous forme de boulets [3], pour des températures de fonctionnement pouvant atteindre 1 300 °C, un taux de combustion de 16 % **FIMA**^{*} et une fluence rapide de $8 \cdot 10^{25}$ n/m². Les relâchements mesurés sont modérés malgré les conditions d'irradiation relativement sévères ; les facteurs de relâchement R/B¹⁰ (fig. 114) sont ainsi inférieurs à 10^{-6} pour le 85Kr, de l'ordre de 10^{-5} pour les Cs 134 et Cs 137 et atteignent 10^{-2} pour l'Ag 110m. Mis à part ce dernier élément qui diffuse relativement facilement à travers les couches PyC denses et même le SiC, les relâchements mesurés en fonctionnement normal pour les autres PF sont dus à des particules initialement défectueuses ou à une contamination de la matrice par de la matière fissile. C'est pour cela que les spécifications de fabrication actuelles imposent un taux de contamination en métal lourd inférieur à 10^{-7} et un taux de particules défectueuses inférieur à $5 \cdot 10^{-6}$. De plus, les performances de rétention dépendent pour beaucoup des conditions de fabrication du combustible [4]. De fait, des particules réalisées par les américains (*NP-MHTGR fuel program*¹¹) avec un cahier des charges sensiblement comparable n'ont pas permis d'obtenir des performances similaires pour leurs compacts avec des taux de relâchements de certains PF pouvant être accrus d'un facteur 100.

Les modèles de migration des PF dans la particule et, plus généralement, dans l'élément combustible (boulet ou com-

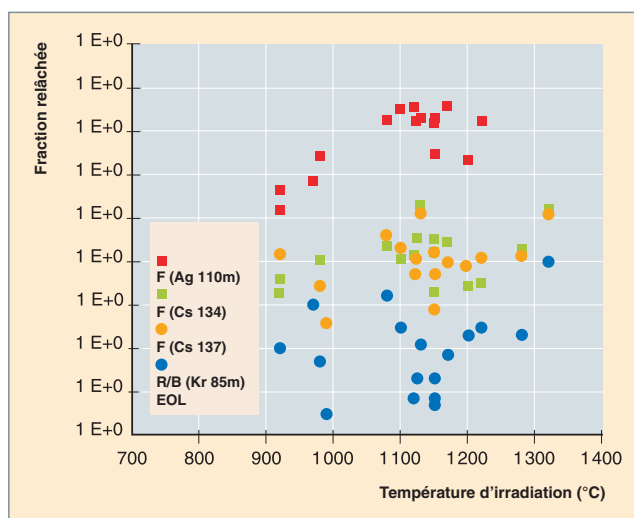


Fig. 114. Taux de relâchement de différents types de produits de fission : gazeux (krypton), volatil (Césium) et métallique (argent) en fonction de la température d'irradiation pour des particules UO_2 à faible enrichissement en U 235 TRISO dans des boulets allemands.

9. LEU : *Low Enriched uranium*, uranium faiblement enrichi.

10. Le taux de relâchement d'un produit de fission radioactif ou non est souvent exprimé par le rapport R/B (*Release / Birth*) qui exprime le nombre d'atomes relâchés sur le nombre d'atomes créés dans le noyau.

11. NP-MHTGR or NPR : *New Production-Modular High-Temperature Gas-Cooled Reactor*.

pect) utilisés dans les logiciels permettant d'évaluer le terme source pour le relâchement des produits de fission dans un cœur de RHT en fonctionnement normal ou en conditions accidentelles, sont des modèles de diffusion utilisant des coefficients de diffusion « effectifs » pour chaque espèce et chacun des milieux modélisés.

La modélisation consiste à résoudre analytiquement ou numériquement la loi de Fick qui s'exprime en géométrie sphérique par :

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = D_i^{\text{eff}} \left[\frac{\partial^2 c_i}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial c_i}{\partial r} \right] - \lambda_i c_i + \dot{q}_i$$

dans laquelle D_i^{eff} représente le coefficient de diffusion de l'espèce i , généralement sous la forme d'une relation d'Arrhénius dépendant principalement de la température et globalisant les mécanismes de transport¹² dans chacune des couches représentées, \dot{q}_i et λ_i étant respectivement le terme de création et la constante de décroissance radioactive de l'isotope considéré.

Les données concernant les coefficients de diffusion effectifs des différents matériaux peuvent différer notablement selon leur provenance. De plus, ces coefficients varient en fonction de la morphologie des couches. Une revue des différentes données a été réalisée récemment dans le cadre du projet européen HTR-TN, afin d'en proposer une sélection pertinente [5] vis-à-vis du cahier des charges établi pour les futures fabrications de particules au CEA. La plupart des logiciels développés à travers le monde utilisent des valeurs de coefficients de diffusion qui permettent d'obtenir des résultats de calcul en bon accord avec les mesures expérimentales, lors d'essais de simulations d'accident réalisées sur des éléments combustibles irradiés.

Si la plupart des produits de fission qui diffusent dans les couches de la particule n'interagissent pas chimiquement avec elles, certains PF tels que le palladium ou des éléments de la famille des lanthanides¹³ peuvent corroder et détériorer la couche SiC (fig. 115). Cela représente un des mécanismes de rupture de fin de vie. Ainsi, des particules à noyau oxyde soumises à de fortes puissances à températures de noyau importantes ($> 1\,250$ °C), montrent une corrosion interne localisée de leur couche SiC. Cette corrosion est généralement expliquée soit par une migration du palladium via les couches de pyrocarbone suivie d'une attaque chimique (le palladium est un PF métallique dont la pression de vapeur est beaucoup plus élevée que les autres PF de métaux nobles), soit par une oxydation par les gaz produits par réaction de l'oxygène libéré par la fission et le carbone (mélange CO/CO_2).

12. Cela inclut la diffusion volumique, la diffusion intergranulaire, le piégeage des PF dans les porosités et fissures de fabrication, etc.

13. La corrosion du SiC par les PF de la série des lanthanides (cérium, praséodyme...) a été essentiellement observée sur des particules à noyau di-carbure (UC_2) irradiées dans les réacteurs américains de Peach Bottom et de Fort St-Vrain. Pour les noyaux oxydes, les PF lanthanides sont retenus dans le combustible sous forme d'oxydes réfractaires miscibles à l' UO_2 .

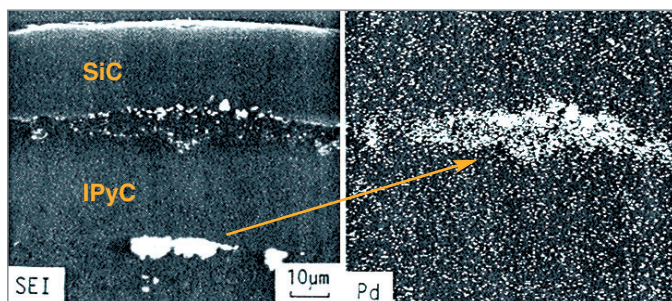


Fig. 115. Corrosion interne de la particule combustible par le palladium.

Les lois de comportement sous irradiation des matériaux constituant la particule semblent dépendre sensiblement de leur microstructure, laquelle résulte des valeurs choisies pour les paramètres du procédé d'élaboration (SOL-GEL, CVD ; voir chapitre « Le combustible à particules »). Ainsi, tant que les corrélations entre les paramètres et la texture fine des couches ne seront pas clairement établies, il sera difficile d'extrapoler une loi élaborée à partir d'anciennes fabrications pour une application aux matériaux actuels.

Dans le passé, les Allemands ont convergé vers une solution technologique unique satisfaisante qualifiée principalement dans le réacteur expérimental HFR et validée dans le réacteur à boulets prototype AVR pour un taux de combustion d'environ 10 % FIMA, et une température sortie hélium de 850 °C). Ces combustibles étaient peu sensibles dans ces réacteurs aux modes de ruine décrits ci-dessus. Au contraire, les Américains ont essayé de nombreuses combinaisons sous des chargements en général plus sévères. Beaucoup d'expériences ont été décevantes, mettant en évidence les modes de ruine décrits ci-dessus.

Actuellement, le regain d'intérêt pour la filière HTR conduit à deux types de démarches. La première, qui minimise la R&D, consiste à reprendre le concept allemand avec ses conditions d'utilisation. Celle-ci est plutôt suivie par les Sud-Africains (PBMR) et les Chinois (HTR-10) qui sont allés jusqu'à récupérer des parties d'installations de fabrication allemandes. La seconde a pour objectif d'utiliser des plus hautes températures et des plus hauts taux de combustion, ce qui oblige de se dégager du concept allemand et, par conséquent, d'entreprendre des programmes de R&D plus importants. Elle est plutôt suivie par les Japonais (HTTR), les Américains (NGNP) et les Français (CEA+AREVA).

Comme on le voit, la phénoménologie du comportement du combustible à particules en réacteur est complexe. Il faut avouer qu'on ne sait toujours pas exactement ce qui limite le taux de combustion dans un réacteur HTR. Malgré des irradiations poussées, les expériences allemandes n'ont pas montré de rupture de particules. Ce que l'on peut déjà dire, c'est que :

- Plus le taux de combustion est élevé, plus la pression est élevée dans la particule, plus grande est la probabilité de rupture de la couche SiC et donc plus grande est la fraction de particules rompues. Pour repousser cette limite, on peut imaginer de modifier la géométrie de référence (augmenter l'épaisseur du tampon, de la couche de SiC, diminuer la taille du noyau). À haut taux de combustion, le gonflement du noyau semble être un facteur limitant, car il risque d'interagir avec les couches denses, mais cela n'a pas été démontré expérimentalement et les experts ne sont pas d'accord entre eux. Les caractéristiques mécaniques semblent diminuer sous l'effet de l'irradiation, mais les valeurs de la littérature sont trop dispersées pour que l'on puisse tirer des conclusions ;

- plus le taux de combustion est élevé, plus la concentration de PF est importante, ce qui augmente les risques de corrosion et d'affaiblissement des enveloppes.

Mieux connaître ces limitations est donc essentiel pour le futur : c'est l'objet des deux irradiations futures prévues dans le réacteur HFR, auxquelles le CEA participe : HFR-EU1 (pour le taux de combustion) et HFR-EU1^{bis} (pour la température) des contrats européens HTR-F et HTR-F1.

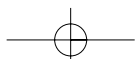
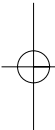
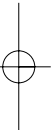
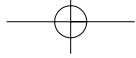
► Bibliographie

- D.G. MARTIN, « *Consideration pertaining to the achievement of high burn-ups in HTR fuel* », Nuclear Engineering and Design 213 (2002), 241-258.
- R.N. MORRIS, D.A. PETTI, D.A. POWERS, B.E. BOYACK, « *TRISO-Coated particle Fuel Phenomenon Identification and Ranking Tables for Fission Product Transport Due to Manufacturing, Operations and Accidents* ». Document NRC.

► Références

- [1] M. WAGNER-LÖFFLER, « *Amoeba behavior of UO₂ coated particle fuel* » Nuclear Technology 35 Nb 2 pp392 – 402 (1977).
- [2] F. HOMAN, H. NABIELEK and L. YANG, « *Low enriched fuel particle performance review* » Report KFA-GA Jül-1502, GA-A14759 UC-77 (1978).
- [3] K. VERFONDERN (Editor), « *Fuel performance and fission product behaviour in gas cooled reactors – chapter 3* », IAEA-TECDOC-978 (November 1997).
- [4] D. PETTI, J. MAKI, J. BUONJIORNO, R. HOBBS and G. MILLER, « *Key differences in the fabrication, irradiation and safety testing of US and German TRISO-particle fuel and their implications on fuel performance* », INEEL/EXT-02-02300 (2002).
- [4] A collaboration of work performed by BNFL, CEA, FRAMATOME-ANP and FZJ, « *Selection of properties and models for the HTR coated particle* », HTR-F-0312-D-3.2.1. First Version Deliverable Nb 12 (2003).

Mayeul PHELIP et Michel PELLETIER,
Département d'études des combustibles



Modélisation mécanique du combustible à particules

Un des grands atouts du combustible à particules réside dans sa robustesse. Sa conception le rend apte à résister à de fortes sollicitations mécaniques et thermomécaniques. Celles-ci peuvent être d'origines diverses : accumulation des produits de fission à l'intérieur des enveloppes, déformation des matériaux sous irradiation, déformation due au champ thermique couplé à la dilatation. Si on veut exploiter pleinement les marges offertes par cette robustesse, il est indispensable de disposer d'une excellente modélisation du comportement mécanique du combustible à particules.

La modélisation mécanique consiste d'abord à appréhender les phénomènes et à les comprendre au travers de l'expérience acquise et, en particulier, au travers des examens post-irradiatoires d'expériences d'irradiations antérieures, pour pouvoir ensuite les simuler à l'aide des équations de la mécanique.

De nombreuses études ont eu lieu au cours des dernières décennies dans différents pays : États-Unis, Allemagne, Grande Bretagne, France, Russie et, plus récemment, Chine et Japon, sur le comportement des particules sous irradiation. Étant donné le grand nombre de particules dans un cœur de réacteur, ces études et les modélisations les plus abouties qui leur ont été associées ont pour leur grande majorité été fondées sur des méthodes statistiques. Ces méthodes statistiques s'appuient néanmoins, généralement, sur des modélisations thermomécaniques déterministes.

Schématiquement, le principe de la modélisation mécanique du combustible à particules est de calculer une évolution de la contrainte (la contrainte tangentielle dans une couche, par exemple) en fonction de la **fluence rapide*** ou du **taux de combustion*** et de lui associer un modèle probabiliste (pouvant tenir compte, par exemple, de la distribution statistique des épaisseurs des couches, de la distribution selon une loi de Weibull de la limite à rupture de la couche calculée, de la distribution des chargements en température, taux de combustion et fluence aboutissant au calcul d'une probabilité de rupture associée à cette évolution de contrainte (fig. 117 et 118). Le modèle probabiliste le plus simple, souvent utilisé en première approche, consiste à ne considérer qu'une distribution statistique globale de type Weibull. La probabilité (cumulée) de rupture de la couche céramique subissant une contrainte σ s'écrit alors :

$$P_R(\sigma) = 1 - e^{-\ln(2) \left(\frac{\sigma}{\sigma_m} \right)^m}$$

où σ_m et m sont respectivement la valeur médiane de la résistance à rupture (correspondant à une probabilité de 1/2) et le module de Weibull de la céramique étudiée. Ces dernières valeurs sont généralement données en fonction de la température et de la fluence pour tenir compte de la dégradation du matériau sous l'effet de l'irradiation. En multipliant P_R par le nombre de particules étudiées (correspondant à une expérience d'irradiation, par exemple), on obtient le nombre moyen attendu de particules rompues.

La modélisation du combustible à particules a donné naissance à bon nombre de codes de calcul. On peut citer les logiciels de calcul allemands PANAMA et CONVOL, le code anglais STRESS3, associé, pour la statistique, au code STAPPLE, les codes Américains SORS (General Atomic) et PARFUME (INEEL), le code russe GOLT ainsi qu'un code français, le code CORMORAN. Les codes STRESS3 et CONVOL sont des évolutions d'une formulation commune. On peut aussi citer le code japonais qui a servi à calculer les particules du réacteur expérimental HTTR et qui a été établi à partir d'une base PANAMA et CONVOL.

La plupart des codes cités ci-dessus utilisent des formulations analytiques qui consistent à considérer de façon simplifiée la particule comme un réservoir à pression (pression produite par le relâchement des produits de fission gazeux et la formation de CO) composé uniquement des trois couches de pyrocarbone interne (IPyC), SiC et pyrocarbone externe (OPyC) (fig. 116). Les chargements appliqués à la particules pris en compte sont la pression des gaz et la déformation sous fluence rapide des couches de PyC.

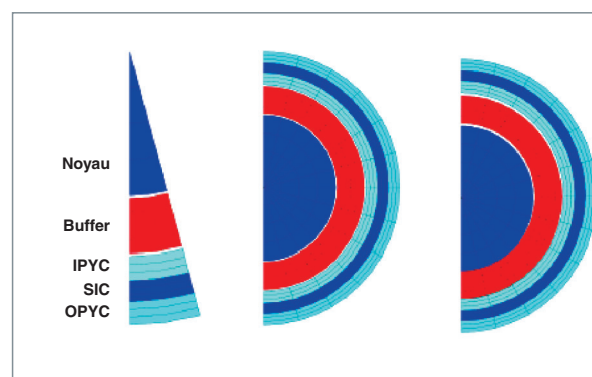


Fig. 116. Exemples de modèles d'éléments finis pour la modélisation mécanique du combustible à particules avec l'application ATLAS développée au CEA (modèle 1D, 2D centré, 2D excentré).

Des hypothèses simplificatrices ont été prises : approximation des coques minces, SiC parfaitement rigide et ne subissant aucune déformation.

Les irradiations de SiC montrent que celui-ci est stable sous irradiation jusqu'aux doses maximales envisagées pour les RHT*. Par ailleurs, il est mécaniquement dix fois plus rigide que le PyC (le module d'Young E est 400 000 MPa pour le SiC, contre ~30 000 MPa pour le PyC). En conséquence, les contraintes mécaniques induites par les variations dimensionnelles de la couche SiC sous irradiation sont négligeables devant les contraintes induites par l'accumulation de gaz et la déformation sous fluence rapide de la couche PyC.

À titre d'exemple, ci-après une formulation simplifiée de la contrainte tangentielle dans la couche SiC élaborée par Williamson et Horner (1971) [1] :

$$\frac{2t_2}{r} \sigma_2 \cong P + \frac{\dot{g}_1}{K_1(1-\nu_1)} \frac{2t_1}{r} + \frac{\dot{g}_3}{K_3(1-\nu_3)} \frac{2t_3}{r}$$

ou σ_2 est la contrainte tangentielle dans la couche SiC, r est le rayon moyen de la couche SiC, P est la pression, t_1 , t_2 et t_3 sont respectivement les épaisseurs des couches IPyC, SiC et OPyC, K_1 et K_3 sont respectivement les coefficients de fluage d'irradiation des couches IPyC et OPyC, ν_1 et ν_3 sont respectivement les coefficients de Poisson de fluage d'irradiation des couches IPyC et OPyC, \dot{g}_1 et \dot{g}_3 sont respectivement les vitesses de déformation induite par l'irradiation des couches IPyC et OPyC. On peut constater que, si \dot{g}_1 et \dot{g}_3 sont nulles, on retrouve la formule classique de la contrainte tangentielle d'une sphère sous pression $\sigma_2 = P \frac{r}{2t_2}$.

Le retour d'expérience de l'utilisation de ces codes montre que les résultats sont très sensibles aux lois de comportement des matériaux utilisés et que ces dernières sont difficiles à élaborer. Jusqu'à présent, il a toujours été très difficile de faire des prédictions fiables.

Le principal inconvénient de ces codes est qu'ils ne traitent pas de la thermique de la particule et qu'ils ne représentent ni le noyau ni la couche de buffer. Fort de son expérience dans le domaine de la modélisation thermo-chimique, thermique et mécanique du combustible, le CEA a décidé de développer un modèle intégral de particule à base d'oxyde d'uranium en utilisant une méthode aux éléments finis, au travers de l'application ATLAS [2] dans la plate-forme de simulation PLÉIADES.

La modélisation du comportement sous irradiation du noyau combustible prend en compte les phénomènes suivants :

- Les évolutions temporelles de la puissance neutronique, de la densité de fission et du taux de combustion ;

- le comportement thermique et mécanique du matériau fissile (lois associées ρ , C_p , λ , α , E , ν) ;
- le taux de création et le relâchement des gaz de fission Xe + Kr, ainsi que l'évolution du rapport O/M du combustible et formation de CO/CO₂ ;
- l'évolution structurale sous irradiation, caractérisée par la densification, les gonflements solide et gazeux, et le fluage.

La modélisation du comportement sous irradiation des couches d'enrobage prend en compte les phénomènes suivants :

- Le comportement thermique et mécanique (ρ , C_p , λ , α , E , ν) ;
- la corrosion de la couche SiC par des PF métalliques sortant du combustible irradié et par le CO ;
- l'évolution structurale sous irradiation, caractérisée par les déformations induites par l'irradiation et le comportement en fluage thermique et d'irradiation ;
- l'évolution sous irradiation de la contrainte à rupture, caractérisé par la distribution de Weibull $\sigma(\theta, \phi t)$ pour matériaux fragiles.

L'application est en cours de développement, les figures 116, 117 et 118 montrent les modèles utilisés ainsi que des résultats en termes de contraintes et de probabilité de rupture.

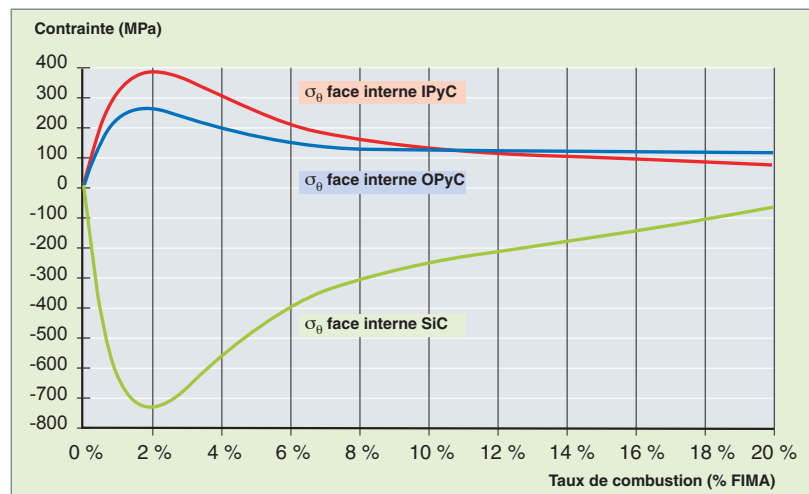


Fig. 117. Exemple de calcul d'évolution de contraintes tangentielles dans les couches IPyC, SiC et OPyC.

Au début de l'irradiation, le pyrocarbone se rétracte, ce qui a pour effet de mettre la couche de SiC en compression. Plus tard, l'accumulation des PF gazeux fait monter la pression dans la particule, et le SiC passe en traction. Ce sont les contraintes de traction et non de compression qui créent les ruptures de cette couche. Sur l'exemple ci-dessus, le SiC reste en compression jusqu'à 20% FIMA, mais selon les scénarios, les particules peuvent passer en traction beaucoup plus tôt, avec des risques de rupture accrus.

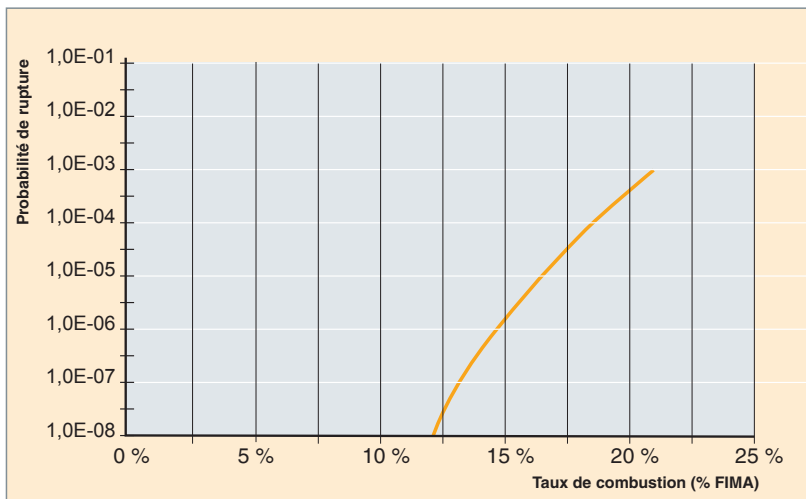


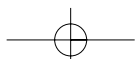
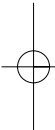
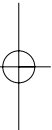
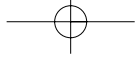
Fig. 118. Exemple de calcul de la probabilité de rupture, en fonction du taux de combustion du combustible à particules.

► Références

[1] D. G. MARTIN, « *Considerations pertaining to the achievement of high burn-ups in HTR fuel* », Nuclear Engineering and Design 213 (2002) 241-258.

[2] F. MICHEL, P. MAILHE, *ATLAS, a code for V/HTR fuel performance evaluation*. Annual Meeting of the American Nuclear Society (ANS - 2006).

Mayeul PHELIP,
Département d'études des combustibles



Le combustible pour réacteurs à très haute température (RTHT)

Le réacteur à gaz à très haute température RTHT [1] à spectre thermique fait partie des concepts de réacteurs candidats de la 4^e génération de réacteurs nucléaires producteurs d'énergie. Le caloporteur hélium sortant du cœur à très haute température (1 000 °C au lieu de 850 °C pour un RHT classique) permet d'envisager le RTHT pour des applications de cogénération d'électricité et de chaleur à très haute température.

Toutefois, l'augmentation significative de la température de sortie de cœur va avoir un impact non seulement sur les matériaux des échangeurs intermédiaires mais va conduire à avoir en fonctionnement nominal un combustible plus chaud que pour les RHT étudiés jusqu'à présent. Dans les chapitres précédents, il a été montré que le combustible à particules, enrobées de couches de pyrocarbone (PyC) et de carbure de silicium (SiC), ne dépasse pas une température maximale d'environ 1 250 °C, en fonctionnement normal, et de 1 600 °C, en cas d'accident de perte de réfrigérant.

Afin d'assurer un bon comportement mécanique et physico-chimique des particules en régime nominal et incidentiel pour des températures maximales de fonctionnement accrues d'environ 150 à 200 °C, tout en maintenant des objectifs en termes de taux de combustion similaires à ceux des combustibles RHT classiques, soit ~ 200 GWj/t¹⁴, la R&D va s'orienter, d'une part, sur la géométrie des éléments combustibles afin de redéfinir une nouvelle conception des compacts et des blocs hexagonaux permettant de diminuer le ΔT entre la particule combustible la plus chaude et le canal hélium et/ou, d'autre part, modifier la nature des matériaux constituant la particule combustible (noyau et couches).

Les conséquences de l'augmentation de température sur le comportement pendant l'irradiation de la particule classique à noyau UO₂ sont multiples [2] :

Tout d'abord, on va assister à une augmentation des phénomènes de transport activés thermiquement ; citons sans ordre électif : le relâchement accru des gaz de fission, la diffusion renforcée des produits de fission volatils et métalliques tels que césium et argent et la formation exacerbée de monoxyde

et de dioxyde de carbone due à la réaction entre les atomes d'oxygène du noyau libérés par fission et le carbone de la couche tampon en pyrocarbone de faible densité (*buffer*). Si, de plus, le gradient de température dans la particule est notable, l'augmentation de température va favoriser le transport de carbone de la zone chaude vers la zone froide de la particule par des migrations en phases vapeur et solide, phénomène connu sous le nom d'« effet amibe » (voir chapitre « Comportement sous irradiation des combustibles à particules »).

Une autre conséquence potentielle est une modification de la cinétique de densification et de gonflement sous irradiation des couches de pyrocarbone interne (*IPyC*) et externe (*OPyC*) denses enserrant la couche de carbure de silicium. Des mesures des vitesses de déformation de pyrocarbones obtenues pour différentes températures d'irradiation et différentes doses neutroniques indiquent que l'augmentation de température accroît cette vitesse et renforce l'anisotropie du matériau. De fait, l'équilibre recherché qui s'établit entre couches pour maintenir la couche SiC en compression le plus longtemps possible pourrait être remis en cause et influencer sur la durée de vie de la particule.

Pour répondre à ces défis, il est, bien sûr, prévu de conserver le concept de particule TRISO, qui a fait ses preuves, mais de modifier quelque peu les matériaux constitutifs de la particule, en utilisant des constituants mieux adaptés à un fonctionnement à très haute température. Nous avons vu qu'un certain nombre de phénomènes pouvant réduire la durée de vie de la particule sont imputables, pour partie, au noyau UO₂. Citons entre autres le relâchement des gaz de fission et de produits de fission métalliques ou volatils ainsi que la production d'oxydes de carbone. En conséquence, il faut examiner des solutions visant à limiter ces événements en utilisant d'autres matériaux que l'UO₂, tel, par exemple, l'oxycarbure d'uranium (UCO) ou en ajoutant des éléments inhibiteurs dans l'UO₂ ou le *buffer* afin de réduire la formation d'oxydes de carbone et le risque de « effet amibe ».

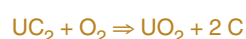
L'expérience la plus marquante sur le combustible UCO provient des études menées par les laboratoires américains pour le programme NP-MHTGR, à partir des années 70, et en particulier à l'ORNL¹⁵. L'argument principal de leur choix de l'UCO comme combustible de référence pour les RHT repose sur

14. Ce taux de combustion massique est un objectif pour le combustible UO₂ LEU* de haute qualité issu du programme allemand. Pour des combustibles fortement enrichis (HEU*) des taux de combustion supérieurs à 750 GWj/t_{ML} ont été obtenus dans le passé.

15. ORNL : Oak Ridge National Laboratory (États-Unis)

son comportement physico-chimique *a priori* satisfaisant vis-à-vis des produits de fission. La présence simultanée des phases oxyde et carbure¹⁶ stabilise le potentiel d'oxygène du système jusqu'aux très forts taux de combustion (75 % FIMA*) autrefois atteints par des combustibles fortement enrichis en U 235.

La phase UC₂ présente dans ce combustible composite réagit avec une partie de l'oxygène libéré par fission d'un noyau uranium provenant de la phase UO₂ pour reformer de l'UO₂ selon la réaction :



De ce fait, l'atmosphère est maintenue à un potentiel d'oxygène P(O₂) faible et qui est stabilisé tout au long de l'irradiation, limitant ainsi fortement la formation des oxydes de carbone. Les conséquences principales sont la réduction de la migration du noyau dans la particule (« effet amibe ») et une moindre corrosion potentielle de la couche en SiC par ce gaz. Une teneur initiale de 10 à 20 % d'UC₂ semble suffisante pour éviter la production de CO pour les taux de combustion visés pour les combustibles actuels de type LEU (*Low Enrichment Uranium*). Des expériences réalisées dans des conditions représentatives des cœurs prismatiques (plus contraignants pour le combustible que le cœur à boulets) ont confirmé l'absence de migration significative des noyaux UCO.

L'élaboration de ces noyaux UCO par voie sol-gel par les techniques de gélification a été évaluée au CEA. Les modifications par rapport au principe de fabrication par voie sol-gel de noyaux UO₂, depuis l'étape de préparation de la solution initiale (introduction de noir de carbone) aux dernières étapes de traitements thermiques de calcination et de frittage par le choix de la température et des gaz utilisés permettent d'obtenir ce type de noyau.

Le noyau UCO, dont la fraction volumique en UC₂ est inférieure à 20 %, a un comportement thermomécanique similaire à celui d'un noyau UO₂. De plus, le surcroît estimé de gonflement solide par rapport à l'UO₂ reste faible au regard des tolérances sur le diamètre de fabrication des noyaux. Au stade actuel de connaissance concernant la microstructure de l'UCO élaboré par voie sol-gel, on considère que le relâchement des gaz de fission dans le volume libre de la particule en fonctionnement nominal n'est pas significativement différent de celui de l'UO₂.

Cet UCO avec une proportion de phase UC₂ inférieure à 20 % ne se comporte pas moins bien que l'UO₂, pour ce qui concerne la rétention des lanthanides¹⁷ ; par contre, la plus

16. La terminologie UCO correspond, en fait, à un composite formé des phases UO₂ et UC₂. Les proportions respectives de ces phases peuvent varier sur un large domaine de compositions.

17. Les combustibles à noyau UC₂ ont beaucoup été étudiés et utilisés dans les réacteurs HTR développés aux États-Unis. Un des principaux inconvénients de l'UC₂ est la faible rétention dans le combustible des produits de fission de type lanthanides (Terres rares) et, par conséquent, un risque important de corrosion de la couche de SiC par ces PF.

faible capacité de rétention des PF métalliques (Ag, Cs, Pd) de la phase UC₂ peut conduire à une diffusion d'autant plus importante de ces PF que la fraction volumique de cette phase dans l'UCO est grande.

Au travers de ces résultats, on perçoit que l'utilisation de l'UCO devrait apporter certains avantages par rapport à l'UO₂ ; les éléments positifs sont principalement une diminution de la pression interne de la particule, grâce à l'absence de production de CO, réduisant ainsi les risques de rupture liés à ce chargement ainsi que la diminution du risque d'« effet amibe » en cas de conditions de fonctionnement particulièrement sévères. On peut pressentir un comportement sensiblement identique à l'UO₂, pour ce qui concerne la diffusion des PF lanthanides, le gonflement du noyau et le relâchement des gaz de fission. Par contre, on peut appréhender des difficultés non négligeables concernant sa fabrication, en particulier la qualité d'homogénéité de sa microstructure due au mélange de noir de carbone à la solution initiale sol-gel. Sous irradiation, on peut craindre une diffusion augmentée de PF métalliques tels que Ag et Pd hors du combustible, en conditions nominale et accidentelle.

Pour contrecarrer ce point faible, il est nécessaire de chercher un renforcement de l'enrobage de la particule vis-à-vis de la diffusion.

Pour cela, différents moyens sont envisageables. Le premier est de piéger ces produits de fission dans les couches internes de la particule avant qu'ils n'accèdent à la paroi interne de la couche SiC. Cela peut être réalisé au moyen de couches dites « sacrificielles », c'est-à-dire des couches de quelques microns d'épaisseur, n'ayant aucun rôle sur la tenue mécanique de la particule, dont les objectifs sont à la fois de piéger au maximum l'oxygène libre, mais également de retenir les produits de fission susceptibles de diffuser à travers la couche principale de SiC ou de l'attaquer chimiquement. De telles particules ont déjà été fabriquées en petite quantité dans le passé en utilisant le carbure de zirconium (ZrC) directement déposé sur le noyau ; même si cette couche se détériore durant l'irradiation, elle apporte un gain substantiel vis-à-vis de la rétention d'éléments comme l'argent ou l'euporium, par rapport à la particule SiC-TRISO.

Une seconde possibilité est de recourir à un matériau plus apte que le SiC à retenir les produits de fission métalliques pour les conditions de fonctionnement normal et accidentel plus sévères du RTHT. Le matériau qui paraît pouvoir répondre à ces critères est le carbure de zirconium [3]. Cette céramique est particulièrement réfractaire ; sa température de fusion de 3 540 °C est à comparer aux 2 000 °C considérés comme température de début de décomposition chimique du SiC. Les avantages que peut apporter le ZrC comme matériau de structure, par rapport au SiC pour la particule TRISO, sont le maintien de son intégrité aux très hautes températures dans les situations accidentelles envisageables pour le VHTR

et la possibilité de fabriquer des compacts avec une matrice graphite de plus forte densité, obtenue par un traitement thermique à plus haute température ($> 2\,000\text{ °C}$), ce qui permettrait, *in fine*, un gain sur leur conductivité thermique et leur température maximale de fonctionnement. Par ailleurs, le ZrC ne réagit pas avec la plupart des produits de fission émis par le noyau. Enfin, la diffusion de ces produits de fission dans le ZrC est, à température donnée, plus faible que pour le SiC.

La mise en œuvre de particules à couche ZrC est, pour le moment, beaucoup moins développée que pour la particule classique SiC-TRISO. Elle n'a fait l'objet que de fabrications de « laboratoire », en particulier aux États-Unis (Los Alamos Scientific Laboratory et General Atomics), au Japon (Jaeri, Japan Atomic Energy Research Institute) ainsi qu'en Russie, suivies d'irradiations expérimentales et d'essais hors pile. Sa fabrication par dépôt en phase vapeur dans un lit fluidisé peut être obtenue par deux méthodes : la sublimation de poudre de chlorure de zirconium ou par génération *in-situ* à partir d'une « éponge » de zirconium dans une atmosphère de gaz halogènes (chlore, iode ou brome) d'halogénure de zirconium. Dans les deux cas, le composé gazeux de zirconium est mélangé dans une proportion adéquate à du méthane de l'hydrogène et l'argon pour obtenir un dépôt de ZrC [3]. Une série d'expériences sur des noyaux simulant en zircone yttrée a été menée récemment au CEA. De nombreux essais d'ajustement des paramètres de dépôt (température d'injection des gaz, débits) ont été nécessaires pour parvenir à un premier résultat acceptable. Les observations macroscopiques (fig. 119) montrent la bonne adhérence entre les couches de PyC dense et de ZrC caractérisée par une rupture franche non déviée à l'interface PyC/ZrC.

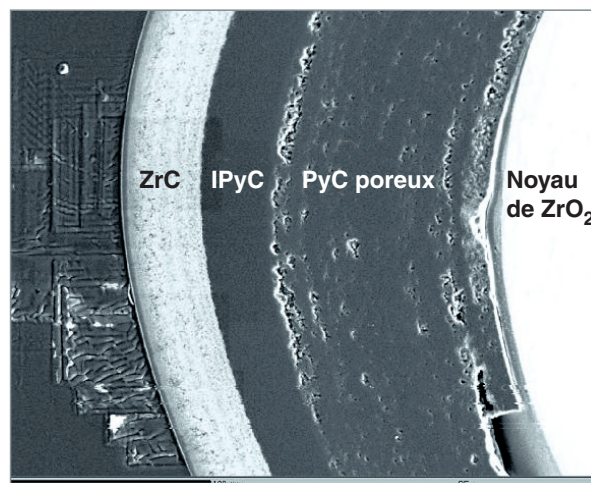
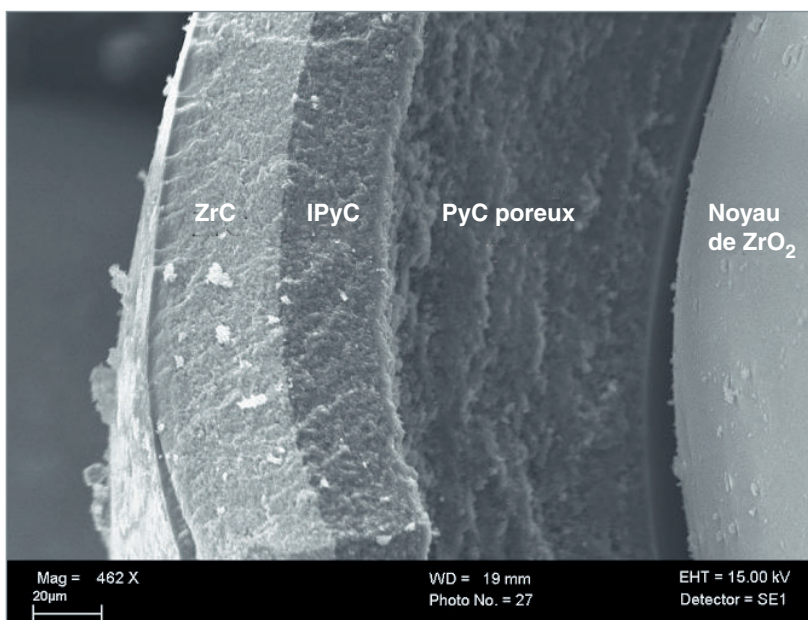


Fig. 119. Fractographie vue au microscope à balayage d'une particule, révélant sa morphologie après l'étape de dépôt de la couche ZrC (DRT/LITEN).

Fig. 120. Micrographie optique sur coupe polie montrant la différence de microstructure, corrélée avec des gradients de composition chimiques, dans l'épaisseur de la couche de ZrC (DRT/LITEN).

Les observations au microscope optique sur coupe polie (fig. 120) révèlent des différences de microstructure corrélées avec des gradients de composition chimiques dans l'épaisseur de la couche de ZrC. En surface, sur environ 8 µm d'épaisseur, la couche présente un aspect compact mais stratifié. Plus en profondeur, la couche apparaît granuleuse avec de légères variations de couleur qui révèlent des variations de composition chimique ou de tailles de grains. Le procédé de dépôt de ZrC doit être optimisé. Les améliorations envisagées devraient permettre de mieux maîtriser la distribution du chlorure de zirconium et de l'hydrocarbure.

Bien que le retour d'expérience sur des particules ZrC-TRISO en fonctionnement normal et pour des conditions représentatives d'accidents soit bien inférieur à celui de leurs homologues à couche SiC, des résultats prometteurs ont déjà été obtenus. Ainsi, on a la confirmation que le ZrC retient mieux que le SiC certains produits de fission tels le césium (fig. 121) et l'argent ; par contre, d'autres, en particulier les lanthanides diffusent plus facilement. Malgré tout, la couche en ZrC s'avère moins susceptible à l'attaque chimique par le palladium et plus résistante à l'« effet amibe » que le SiC. Par ailleurs, des particules ZrC-TRISO ont résisté avec un taux de casse inférieur à 1 % à des essais de chauffage post-irradiation jusqu'à $2\,400\text{ °C}$ [3].

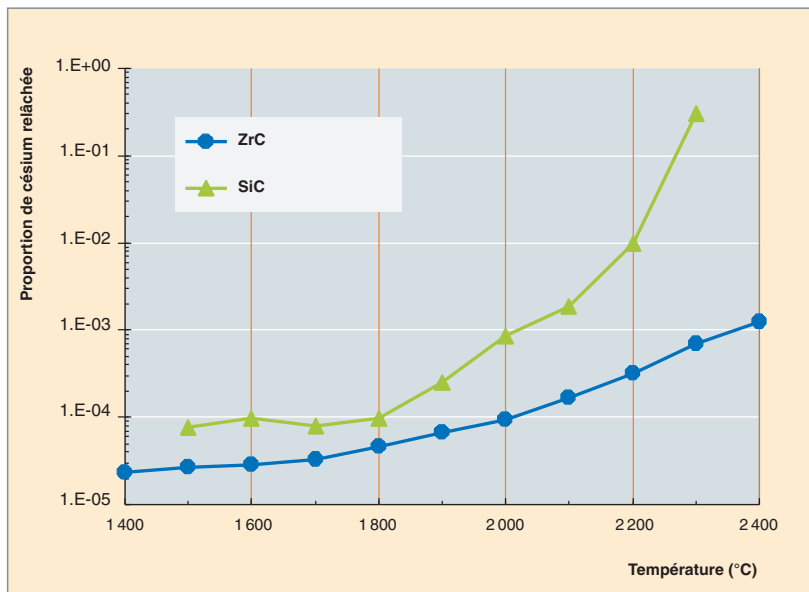


Fig. 121. Relâchement comparé de l'isotope Cs 137 de particules revêtues de couches SiC et ZrC, lors d'un chauffage post-irradiation d'une durée de deux heures.

Un certain nombre de solutions pertinentes pour une application VHTR existent donc déjà ; elles demandent cependant une validation à l'échelle industrielle pour produire *in fine* une particule TRISO plus performante que la référence SiC-TRISO actuelle, autorisant un gain notable vis-à-vis des températures d'utilisation en situations nominale et accidentelle, tout en préservant la sûreté du réacteur.

► Références

- [1] M. LECOMTE, « *Le réacteur à gaz à très haute température (VHTR)* », Revue Générale Nucléaire, année 2003, n°4 juillet-août, p. 69-72.
- [2] J.-P. NABOT, P. MARTIN, M. PELLETIER, S. PILLON et N. CHAUVIN, « *Technologies du combustible et du cycle associé pour les différents concepts Génération IV* », Revue Générale Nucléaire, année 2003, n°4 juillet-août, p. 98-104.
- [3] K. VERFONDERN (Editor), « *Fuel performance and fission product behaviour in gas cooled reactors – chapter 7* », IAEA-TEC-DOC-978 (November 1997).

Michel PELLETIER,
Département d'études des combustibles

Le combustible pour réacteurs rapides à caloporteur gaz (RCG)

Les réacteurs rapides permettent une excellente économie de neutrons, mais nécessitent un fort inventaire de matière fissile, en raison de la faiblesse des **sections efficaces*** aux hautes énergies. Par **capture*** fertile sur l'uranium 238, ils permettent de valoriser au mieux les ressources naturelles, dans le cadre d'un cycle fermé. Dans un spectre rapide, les sections efficaces de fission et de capture sur les principaux isotopes des **actinides*** favorisent la fission et permettent un recyclage des actinides mineurs (Np, Am, Cm), et donc une réduction drastique des éléments radioactifs à vie longue à mettre aux déchets. Les réacteurs à neutrons rapides sont donc, à l'évidence, des réacteurs attractifs pour le futur sur tous les aspects du cycle. Cela sera encore plus vrai si ce cycle peut être fermé par un procédé de traitement qui gère en groupe l'ensemble des actinides (uranium, plutonium, actinides mineurs), renforçant ainsi la résistance à la prolifération de ce cycle.

En plus de ces avantages, partagés par tous les réacteurs à spectre rapide, les réacteurs à caloporteur gaz (RCG) ouvrent l'accès à des applications autres qu'électrogènes, en particulier la production d'hydrogène rendue possible par les températures élevées du caloporteur en sortie de cœur. Ce concept peut, en outre, s'appuyer sur une technologie des caloporteurs gaz déjà existante en spectre thermique. Le RCG se présente, en quelque sorte, comme une « déclinaison durable » du réacteur HTR.

Cahier des charges du combustible RCG

Mais ces ambitions passent, au préalable, par la nécessité de mettre au point un combustible adapté. La principale des difficultés tient au fait que le gaz (hélium, en l'occurrence) est un caloporteur à faible densité qui doit donc occuper une importante fraction volumique du cœur (environ 40 %) pour pouvoir évacuer la chaleur, ce qui limite, en conséquence, le volume dévolu au combustible à ses barrières de confinement et aux structures de l'assemblage.

La conception du cœur des rapides à gaz impose, en outre, au combustible les spécifications suivantes :

- Une aptitude à incorporer le plutonium à hauteur de 15 à 20 %, et les actinides mineurs dans une plage allant de 2 % (recyclage à l'équilibre dans un spectre rapide) à 5 % envi-

ron (si l'on veut recycler les actinides mineurs issus des réacteurs à spectre thermique) ;

- une densité élevée en atomes lourds qui impose un matériau fissile dense (comme le carbure ou le nitrure) ;
- une capacité à être traité et re-fabriqué en télé-opération, dans le cadre d'un cycle fermé de tous les actinides, avec génération maîtrisée et minimisée de déchets ;
- un bon comportement, avec un haut niveau de confinement des radio-éléments dans la gamme des températures d'environ 1 000 °C à 1 200 °C en fonctionnement nominal ;
- un comportement faiblement dégradé, en conditions accidentelles (notamment dépressurisation) où les températures peuvent atteindre 1 600 °C ;
- une capacité à atteindre des **taux de combustion*** garantis, à terme, d'une économie convenable du cycle (5 at % FIMA, au départ, 10 at % **FIMA***, ensuite), soit une **fluence*** rapide de 2.10^{27} n/m².

De ces spécifications découlent un certain nombre de conséquences sur le choix des matériaux pour les éléments combustibles et sur les différentes propriétés physiques dont ils doivent faire preuve.

Matériau fissile pour les RCG

Le matériau fissile doit être le plus dense possible en atomes lourds. On s'oriente donc vers un carbure ou un nitrure d'actinides, de densité supérieure à l'oxyde (x 1,23 et x 1,30 respectivement à porosité de fabrication égale pour les composés mixtes U-Pu), conduisant mieux la chaleur (conductivité thermique environ 7 fois supérieure), autorisant ainsi un combustible « froid », mieux apte à retenir ses produits de fission et donc sollicitant moins la première barrière de confinement.

Le choix entre carbure et nitrure s'appuie sur les considérations suivantes :

- **Performances** : Le carbure offre les meilleures performances en termes de volume de cœur et de matière fissile immobilisée. L'azote du nitrure présente, en effet, une capture neutronique (réaction [n,p] sur N 14 produisant du

C 14) ; pour que le nitrure ait des performances équivalentes à celles du carbure, il est nécessaire d'inclure dans le cycle une étape d'enrichissement (d'au moins 50 %) de l'azote en isotope N 15 (l'azote naturel possède environ 0,5 % de N 15). Le nitrure impose, par ailleurs, une gestion du C 14 engendré et produit, en outre, de l'hélium (par réaction $[n,\alpha]$ sur le N 14) qui représente environ 20 % du volume de gaz de fission ;

• **comportement sous irradiation :**

Les vitesses de gonflement sous irradiation sont du même ordre de grandeur dans les combustibles carbure et nitrure : environ 1,4 à 1,6 % / at %, tant que l'on reste à des températures n'excédant pas 1 200 °C (qui permettent, en outre, un relâchement assez faible des gaz de fission). Le nitrure, qui pourrait avoir une vitesse de gonflement légèrement plus faible, présente, en revanche, à hautes températures, des signes de dissociation de la phase (U,Pu) N avec précipitation dans le jeu combustible gaine de la phase métallique enrichie en plutonium.

• **sûreté du cycle :** Les composés carbure et nitrure peuvent s'enflammer spontanément à l'air s'ils sont sous forme pulvérulente : il faudra donc savoir gérer cette pyrophoricité dans les étapes du cycle.

La balance pencherait plutôt en faveur du carbure, mais avant un choix définitif, plusieurs points devront faire l'objet d'investigations, en particulier, l'aptitude des composés carbure et nitrure à incorporer des fractions significatives d'actinides mineurs, tout en gardant un comportement satisfaisant sous irradiation.

Matériaux pour la première barrière de confinement

Le strict respect du cahier des charges impose l'utilisation de matériaux céramiques pour constituer la structure de l'élément combustible et la première barrière de confinement. Les alliages de métaux réfractaires (Mo, Nb, Ta, W) ont, en effet, un très fort pouvoir d'absorption neutronique et dégraderaient les performances du cœur.

Les principales céramiques identifiées sont des carbures et des nitrures (SiC, TiN, ZrC, TiC, ZrN) qui peuvent être associées soit au carbure, soit au nitrure d'actinides. En particulier, le carbure de silicium montre un comportement acceptable sous flux de neutrons dans la gamme où il est connu (jusqu'à 80 dpa SiC, soit pratiquement la moitié de la gamme souhaitée), et aux températures envisagées dans laquelle son gonflement est faible.

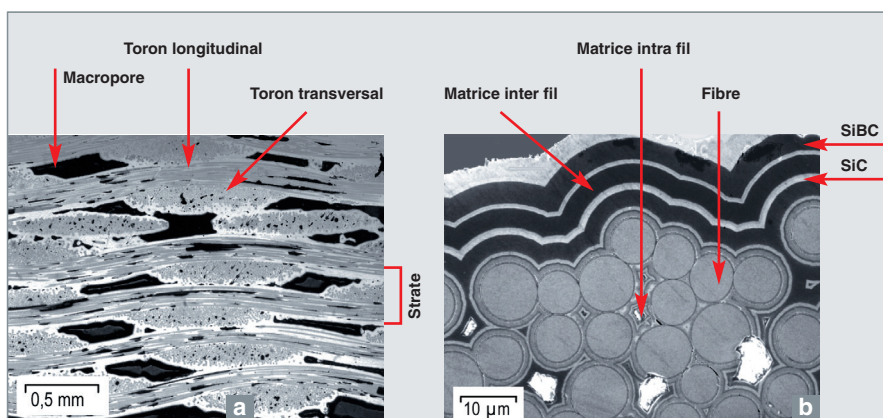


Fig. 122. Images au MEB d'un composite céramique SiC/SiC fibré (LCTS Bordeaux).

Mais les premières études ont montré qu'il n'était pas possible d'utiliser des céramiques monolithes, telles que du carbure de silicium, en raison de leur trop faible **ténacité*** : toute structure d'élément combustible doit, en effet, présenter un minimum de **ductilité***. Il est donc nécessaire de faire appel à des céramiques renforcées, seuls matériaux susceptibles de dégager le compromis recherché entre propriétés thermiques, mécaniques et neutroniques.

L'utilisation de composites à base de fibres longues, tels que les SiC/SiC fibrés (fig.122), pourrait apporter la solution recherchée : grâce aux caractéristiques de leur renfort fibreux, ils apportent une certaine tolérance à la déformation et à l'endommagement. En revanche, ils ne présentent pas une étanchéité suffisante aux gaz de fission et à l'hélium du caloporteur ; il est donc nécessaire, pour garantir la fonction de première barrière de confinement, de faire appel à des liners ou revêtements étanches constitués d'alliages métalliques réfractaires de faible épaisseur. Cette exigence a pour effet de fortement compliquer la fabrication des éléments combustibles par rapport à celle des autres filières comme les RNR Na qui emploient des gainages métalliques assurant la double fonction d'étanchéité et de tenue mécanique.

Concepts d'éléments combustibles RCG

On a d'abord tenté d'adapter au spectre rapide le **concept de particule HTR**, qui réalise un confinement des produits de fission au plus près des noyaux fissiles où ils sont émis grâce à un enrobage multicouches. Ce concept, très robuste lorsqu'il est dimensionné comme dans les réacteurs HTR (avec 4 couches), a dû être abandonné dans le cas des RCG, car il présente l'inconvénient d'une faible fraction volumique de matière fissile et ne permet donc pas de répondre au cahier des charges des combustibles RCG. Par ailleurs, certains matériaux de base de ce concept (les carbones pyrolytiques en particulier) supportent mal une fluence rapide élevée.

Les premières études de dimensionnement ont permis de dégager deux concepts répondant au cahier des charges.

• **le concept d'aiguille** cylindrique, avec pastilles gainées, ramène à un dessin classique. Le challenge est alors reporté sur le dimensionnement de l'aiguille et sur la mise au point de la gaine. La gaine pourrait être constituée d'une céramique renforcée (telle que le SiC/SiC fibré) avec un liner métallique.

Le phénomène qui va limiter la durée de vie de telles aiguilles RCG est l'interaction combustible gaine. Le combustible carbure ou nitrure gonfle environ deux fois plus vite que l'oxyde, et aux températures où il sera utilisé, il flue difficilement. La gaine en céramique (même avec renfort fibreux) a une ductilité trop faible pour accommoder sans endommagement rédhibitoire une forte interaction mécanique. Cette faible ductilité impose, en outre, des aiguilles de faible longueur (maximum environ 1 mètre).

La conception de ces aiguilles va donc consister à les faire fonctionner hors interaction mécanique le plus longtemps possible, c'est-à-dire à trouver le meilleur compromis parmi un ensemble de paramètres de fabrication et de fonctionnement tels que le diamètre, le jeu initial combustible/gaine, la porosité de fabrication ainsi que la stabilité de cette porosité sous irradiation, la puissance linéique maximale, etc.

• **Le concept de plaque macro-structurée**, proposé récemment au CEA-Cadarache, constitue une solution originale (fig. 123) permettant de répondre aux différentes contraintes rappelées ci-dessus liées au cahier des charges et aux propriétés des matériaux. Dans ce concept, l'âme de la plaque est constituée d'une matrice céramique sous forme de nid d'abeilles, et la phase fissile se présente sous forme de comprimés cylindriques placés dans chacune des alvéoles de la matrice. Deux plaques également en céramique assurent la fermeture des alvéoles et l'échange thermique avec le caloporteur gaz. Ces plaques sont insérées en trois séries de

rayonnages à 120 degrés dans la section hexagonale de l'assemblage. Un premier dimensionnement de ces plaques amène à une épaisseur d'un peu moins de 10 mm pour une largeur de 120 mm et une longueur de 250 mm.

Les avantages théoriques d'un tel concept sont :

- Un transfert thermique optimisé de la source de puissance vers le caloporteur avec une résistance thermique minimale entre le comprimé combustible et la gaine et une surface d'échange maximale entre la gaine et le caloporteur ; ce dessin permet, en outre, une bonne régulation de la température du combustible, quel que soit le niveau de relâchement des gaz de fission dans l'alvéole ;
- la présence dans chacune des alvéoles d'un espace autour du comprimé combustible (combinaison des géométries cylindriques et hexagonales) permettant de recueillir les gaz de fission, tout en limitant leur mise en pression dans toutes les situations de fonctionnement ;
- une bonne tenue mécanique de la plaque aux chargements en pression et aux interactions mécaniques entre le combustible et le gainage : l'interaction comprimé – cellule se limite à la seule dimension orthogonale au plan de plaque, ce qui permet de minimiser les contraintes en accommodant la déformation imposée par le gonflement du combustible par flexion de la gaine et par déformation radiale du comprimé par un mécanisme de fluage d'irradiation ; l'utilisation de comprimés combustibles de forme bombée permet, en outre, d'assurer un contact progressif, évitant ainsi les concentrations de contraintes.

Du fait du cahier des charges sévère qui leur est imposé, les éléments combustibles RCG sont incontestablement ceux pour lesquels la mise au point et la qualification constituent le plus fort challenge. Les études en cours au CEA visent à relever ce défi : des solutions ont été proposées sur le papier, des fabrications sont en cours dans les deux concepts aiguilles et

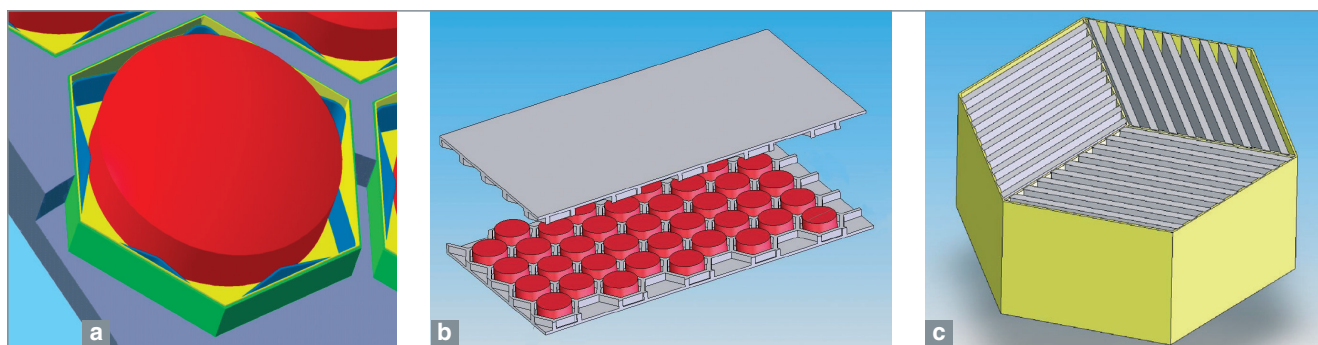


Fig. 123. Schémas d'un comprimé de combustible dans son alvéole (a), d'une plaque macro-structurée (b), et d'un assemblage de plaques dans une structure hexagonale (c).

plaques. Des irradiations expérimentales sont lancées, notamment dans Phénix (irradiations FUTURIX) ou BR2 (expérience IRRDEMO). Une modélisation spécifique est également développée : application CELAENO dans la plateforme PLÉIADES. L'objectif est de démontrer, en 2012, la faisabilité et la viabilité de ces concepts d'éléments combustibles RCG.

► Bibliographie

P. MARTIN, N. CHAUVIN, « *Gas cooled Fast Reactor system : major objectives and options for reactor, fuel and fuel cycle* », GLOBAL'05, Tsukuba, Japan, October 9-13, 2005.

J.-C. GARNIER, J.-C. BOSQ, T. CADIOU, N. CHAUVIN, O. CIONI, P. DUMAZ, D. LORENZO, F. MORIN, A. RAVENET, P. RICHARD et A. TOSELLO, « *Status of GFR pre-conceptual design study* », ICAPP'07 Nice, France.

A. RAVENET, « *Élément combustible de type plaque macro-structurée* », brevet n° 0552488 (2005).

Yannick GUÉRIN et M. PELLETIER,
Département d'études des combustibles

Combustibles pour réacteurs de recherche

Un retour d'expérience considérable

La conception des combustibles des réacteurs de recherche n'a pratiquement pas évolué depuis leur mise en service, au début des années 60. En effet, la très forte densité de puissance qui caractérise ces réacteurs, jusqu'à 1 500 kW/litre de cœur (HFIR, États-Unis), impose l'utilisation d'un combustible très divisé, sous forme de plaques minces d'environ 1 mm d'épaisseur, majoritairement constitué d'aluminium (pour sa bonne conductivité thermique). Le procédé industriel de référence (fig. 124) qui consiste à laminier simultanément un noyau de combustible ou âme fissile (mélange de poudres d'alliages d'uranium et d'aluminium) et le gainage (plaques en alliage d'aluminium) répond particulièrement bien à cet objectif. Ce procédé bénéficie d'un retour d'expérience considérable puisque la quasi-totalité des réacteurs expérimentaux utilise ce type de combustible. Il a été mis en œuvre à grande échelle par NUKEM en Allemagne, l'UKAEA en Grande-Bretagne, la CERCA en France et BABCOCK aux USA. Le combustible standard est alors à base de poudres d'UAl_x (ou UAl_x) où l'uranium est enrichi à 93 % en U 235 – combustible HEU (*High Enriched Uranium*).

À la fin des années 70, les États-Unis ont décidé de ne plus exporter d'uranium très enrichi (U 235 > 20 %). Cette décision résulte de la recommandation du groupe de travail n° 8 de l'INFCE (*International Fuel Cycle Evaluation*) qui a fixé à 20 % la limite de l'enrichissement au-delà de laquelle l'uranium enrichi serait considéré comme proliférant [1]. Suite à cette évaluation, engagée par le président Carter en 1977, un programme de conversion des réacteurs de recherche au LEU* (*Low Enriched Uranium*) a été mis en œuvre. C'est en 1978 que le DOE Américain (*Department Of Energy*) a confié cette tâche à l'ANL (*Argonne National Laboratory*). Le programme « RERTR » (*Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*) a commencé dès 1978, avec une forte implication du CEA qui a organisé la 2^e conférence à Saclay, en 1979.

Les évolutions de conception des combustibles des réacteurs de recherche, réalisées depuis 1980, résultent de la mise en application de ces directives. En particulier, il a fallu trouver de nouveaux alliages, plus chargés en uranium, pour compenser la perte sur l'enrichissement de l'uranium puis qualifier sous irradiation ces nouveaux produits. Cette question est toujours d'actualité et au cœur de la problématique du combustible pour le réacteur de recherche Jules Horowitz, futur instrument européen pour les expériences d'irradiation neutroniques, qui devrait diverger à Cadarache début 2014 [2].

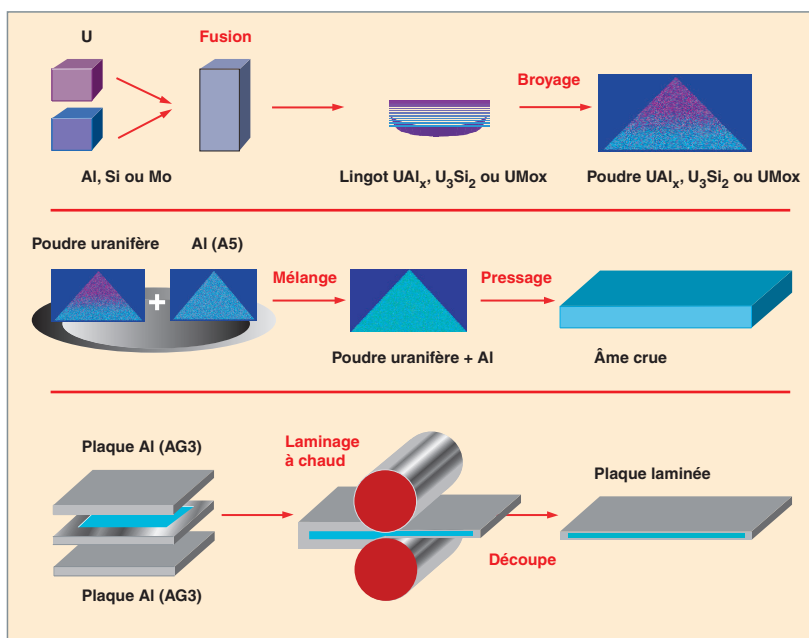


Fig. 124. Principe du procédé de fabrication de plaques combustibles par « colaminage ».

Conversion des réacteurs français au combustible U_3Si_2 faiblement enrichi ($\leq 20\%$ en U 235)

Le CEA a contribué activement à la qualification du combustible U_3Si_2 , notamment avec les irradiations de miniplaques dans le réacteur SILOE, puis de plaques à l'échelle 1 dans le dispositif IRIS, spécialement conçu pour mesurer précisément les variations d'épaisseur des plaques à chaque fin de cycle.

L'ensemble des données nécessaires à la conversion des réacteurs a été édité par l'autorité de sûreté américaine en

1988, sous la référence NUREG-1313 (U_3Si_2 qualifié pour une charge en uranium de 4,8 gU/cm³).

Les réacteurs à performances modérées

OSIRIS : Ce réacteur, qui utilisait depuis les années 70 un combustible Caramel (UO_2 enrichi à 7 % gainé Zircaloy), n'était pas formellement concerné par la conversion proprement dite au LEU des réacteurs expérimentaux. Toutefois, il a été jugé opportun d'utiliser le combustible U_3Si_2 qualifié au niveau mondial et fabriqué à grande échelle par AREVA-CERCA.

Le processus de conversion n'a pu commencer qu'en 1994 en raison des questions complémentaires posées par l'autorité de sûreté. Ainsi, des expériences spécifiques telles que EPSILON à SILOE ont été réalisées pour fournir des informations concernant le relâchement des produits de fission en situations accidentelles, et l'irradiation d'une plaque instrumentée a été menée pour pouvoir recalculer les résultats de calcul FLICA, code CEA de référence pour la thermohydraulique des éléments combustibles.

La conversion du réacteur OSIRIS a été réalisée progressivement, en remplaçant au fur et à mesure les combustibles Caramel usés par des combustibles U_3Si_2 .

Les réacteurs à performances élevées

ORPHÉE : les calculs réalisés ont montré que le passage du combustible $UAlx$ HEU (*High Enriched Uranium*) à des combustibles siliciures (LEU), plus denses, entraînerait une réduction importante de la durée de vie du cœur, de l'ordre d'un facteur 2, ainsi qu'un durcissement du spectre ayant pour conséquence une réduction de l'efficacité des systèmes d'arrêt d'urgence. Pour cette raison, il a été décidé de ne pas convertir le réacteur ORPHÉE.

RHF (Réacteur à Haut flux de Grenoble) : pour des raisons identiques, et parce que les calculs réalisés par ANL sur le RHF ont montré qu'il était nécessaire de disposer d'un combustible ayant une densité de 7,9 gU/cm³, la conversion du RHF a été repoussée à une date ultérieure.

Le HEU (93 %) nécessaire au fonctionnement de ces réacteurs est approvisionné en Russie depuis 1997.

Conversion de tous les réacteurs : des besoins de R&D pour les réacteurs à performances élevées

Les principaux réacteurs en service (ou en projet) concernés par la problématique de conversion au LEU et par le développement de nouveaux combustibles sont indiqués dans le tableau suivant. Il existe, en fait, 129 réacteurs dans le monde (au début 2007), utilisant du combustible HEU et inscrits dans un programme de reconversion.

Les réacteurs à performances modérées tels qu'OSIRIS, STUDSVIK et HFR récemment (mai 2006), ont été convertis au combustible LEU sans difficulté majeure.

Aujourd'hui, on peut faire le constat suivant :

- Les réacteurs à haut flux, en particulier le RHF, ORPHÉE, BR2, ATR, FRM2 et le RJH ne peuvent pas utiliser le combustible LEU U_3Si_2 à 4,8 gU/cm³, seul à être réellement qualifié, sans une baisse significative des performances de flux ou sans « surconsommation » de combustible ;
- le fait de continuer, indéfiniment, à ne pas appliquer les directives de réduction de l'enrichissement est considéré comme inacceptable au plan politique ;
- la question de la fin de cycle est devenue critique depuis que les États-Unis ont fait savoir, en 1996, qu'ils n'accepteraient

Les principaux réacteurs de recherche dans le monde			
Réacteurs	Pays	MW	Conversion au LEU qualifié à ce jour (E < 20 %)
OSIRIS	France	70	oui
ORPHÉE	France	14	non
RJH	France	100	(projet, nécessite la qualification d'un LEU haute densité)
RHF	France	57	non
FRM2	Allemagne	20	non (prévoit d'utiliser un enrichissement intermédiaire)
BR2	Belgique	100	non
HFR/PETTEN	Pays-Bas	45	oui
STUDSVIK	Suède	50	oui
MARIA	Pologne	30	Conversion partielle
ATR	États-Unis	250	non
HFIR	États-Unis	85	non
HANARO	Corée	30	oui
JMTR	Japon	50	oui
PIK	Russie	100	(projet, utilisera du HEU)
MIR	Russie	100	non
SM2	Russie	100	non
RSG-GAS	Indonésie	30	oui
ANSTO	Australie	20	(projet, utilisera du LEU)

plus de reprendre les combustibles étrangers hautement enrichis au-delà de 2006. Dès lors, il devient indispensable, pour les pays disposant de réacteurs expérimentaux, de trouver des solutions, notamment en optant pour un combustible facilement retraitable, alors que le combustible U_3Si_2 est réputé « difficilement retraitable ».

C'est dans ce nouveau contexte, apparu à la fin des années 90, qu'a été engagée, sous l'égide du DOE et d'ANL, une réflexion pour sélectionner et qualifier avant 2006 (cette échéance a été repoussée à 2010) un nouveau combustible répondant aux objectifs suivants :

- Une augmentation significative de la densité pour permettre la conversion de tous les réacteurs, y compris ceux du DOE ;
- une retraitabilité aisée du combustible.

C'est sur ces critères que l'UMo7-9 (alliage d'U et de Mo avec 7 à 9 % en poids de Mo) a été retenu comme étant le meilleur candidat. Il permet, en effet, un gain sur la charge en uranium d'environ 40 % et il a été reconnu comme facilement retraitable, à l'issue de l'étude de faisabilité réalisée par AREVA NC et le CEA.

La communauté internationale, notamment les États-Unis (ANL), le Canada, la France, la Russie, la Corée et l'Argentine, s'est organisée pour apporter sa contribution à la qualification de ce nouveau combustible.

En France, ces études se déroulent dans un cadre coopératif entre AREVA (plus particulièrement CERCA qui a le leadership de la fourniture des combustibles) et le CEA qui a pour projet de réaliser un grand réacteur d'essais : le réacteur Jules Horowitz (RJH). Les résultats des études sont partagés et analysés au niveau international, en particulier avec l'ANL. L'objectif du programme français de développement de l'UMo est de qualifier un combustible UMo ayant une densité jusqu'à 8 gU/cm^3 , de façon :

- à répondre aux exigences de flux des réacteurs dits « à performances élevées » et en premier lieu aux exigences du futur réacteur Jules Horowitz ;
- à pouvoir fournir aux exploitants qui ne disposent pas de solution de fin de cycle un combustible LEU de remplacement, facilement traitable, comme solution alternative au combustible U_3Si_2 .

Ce programme répond à tous les aspects du cycle du combustible : fabrication, comportement sous irradiation, développement des codes et validation du procédé de retraitement. Les développements et qualifications sont réalisés sur des plaques à l'échelle 1.

Un combustible « avancé » pour les réacteurs de recherche : l'UMo

Études réalisées au CEA sur l'UMo, entre 1999 et 2003.

Un accord pentapartite entre CEA, COGEMA, TECHNICA-TOME, FRAMATOME et CERCA a encadré ces études entre 1999 et 2003. Les principaux résultats de cette première phase sont résumés ci-après.

Le procédé de fabrication

Pour ses fabrications de combustible UMo, la CERCA met en œuvre son procédé dit « avancé » qui a été mis au point à l'occasion des fabrications de combustible U_3Si_2 avec des densités allant jusqu'à 6 gU/cm^3 . La fraction volumique occupée par les particules d'UMo se situe toujours aux alentours de 50 %, mais la porosité de la zone combustible dépend de la nature de la poudre UMo utilisée : cette porosité est supérieure à 10 % avec des poudres broyées et elle est inférieure à 2-3 % avec des poudres obtenues par le procédé d'atomisation¹⁸. La densité en uranium atteinte est légèrement supérieure à 8 gU/cm^3 . Le contrôle des plaques (radiographie X, ultrasons, micrographie) montre que les plaques sont conformes aux spécifications.

Dans une première étape, les poudres d'UMo ont été produites par le procédé standard de concassage/broyage (classiquement utilisé pour l' U_3Si_2). Mais la ductilité de l'UMo, alors que l' U_3Si_2 est fragile, rend cette étape fastidieuse et, en tout cas, rédhitoire, sans développement spécifique, pour une production à l'échelle industrielle. Les premiers prototypes de l'étude ont été fabriqués ainsi (expériences IRIS-1 et UMUS, voir tableau ci-après). Pour les irradiations suivantes (FUTURE et IRIS 2), les plaques ont été fabriquées à partir de poudres atomisées. Le procédé d'atomisation est, en revanche, industrialisable.

Le programme d'irradiations

La qualification du combustible UMo passe par la démonstration de son bon comportement sous irradiation. Le programme d'irradiations sur des plaques à échelle 1 a compté 4 expériences durant la première phase d'études (1999-2003) [3], avec des températures de gainage en augmentation. Les conditions d'irradiation de ce programme sont rassemblées dans le tableau suivant et comparées en figure 125. Les expériences ont été conçues principalement pour déterminer l'effet des puissances spécifiques élevées (croissant de $\sim 140 \text{ W/cm}^2$ à $\sim 340 \text{ W/cm}^2$) sur le comportement sous irradiation du combustible particulaire UMo/Al. L'objectif a été d'at-

18. Ce procédé consiste en l'atomisation d'UMo liquide sur un disque en rotation, puis une trempe rapide sous atmosphère d'argon. Les particules ainsi obtenues sont quasi sphériques. Le procédé d'atomisation est jugé comme le plus prometteur en termes de production industrielle

Bilan des expériences françaises menées dans le cadre pentapartite (1999-2003).				
Expériences	IRIS-1	UMUS	IRIS-2	FUTURE
Réacteur	OSIRIS (Fr)	HFR (NL)	OSIRIS (Fr)	BR2 (B)
Année	2000 - 2001	2000	2002	2003
Nombre de plaques à l'échelle 1	3	2/2	4	2
Type de poudre UMo	broyée	broyée	atomisée	atomisée
Enrichissement (% U 235)	19,75	19,75/35,00	19,75	19,75
Charge en uranium (gU/cm ³)	8,0	8,0	8,0	8,0
Porosité de fabrication (%)	11-13	11-13	1-2	1-2
Flux th.surf. max début de vie (W/cm ²)	140	175/250	240	340
Temp. max du gainage début de vie (°C)	75	90/110	100	130
Vitesse du réfrigérant (m/s)	9	8	9	12
Situation de l'essai	terminé	arrêt après rupture	arrêt prématuré	arrêt prématuré
Nombre de cycles d'irradiation	10	2	4	2
Durée totale (JEPP)	240	48	60	40
Taux de combustion moyen (% U 235) fin de vie	50	15	30	25
Taux de combustion max local (% U 235) fin de vie	67	20	40	33

teindre un taux de combustion (tc) maximum local de 70 %¹⁹ dans chaque essai. D'une façon générale, quel que soit le mode de gestion des cœurs de réacteur, le taux de combustion maximal local en fin de vie n'excède pas 80 %.

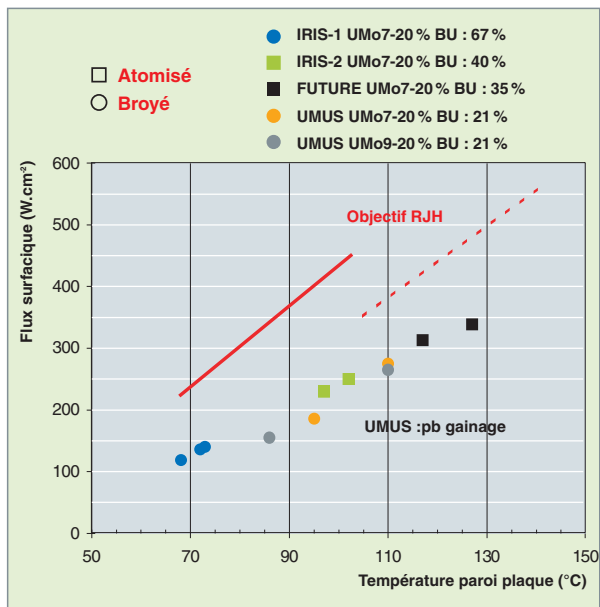


Fig.125. Évolution du flux surfacique, en fonction de la température extérieure de la gaine.

19. Le taux de combustion est exprimé ici en fraction d'atomes d'U 235 initiaux consommés. Le taux de combustion, en GWj/t, vaut approximativement $[936.06 * ((0.8232\varepsilon + 0.0028)a + 0.031(1-\varepsilon)a^2)]$, avec a, le taux d'équipement en U 235 et ε , l'enrichissement (entre 0 et 1). Des taux de combustion de 50 % ou de 70 %, d'un combustible enrichi à 20 % d'U 235, sont équivalents respectivement à ~ 84 et 120 GWj/t.

Dans OSIRIS, le dispositif IRIS (fig. 126) permet, à chaque fin de cycle, de mesurer l'épaisseur des plaques sur toute leur hauteur. Ainsi, les plaques IRIS-1 et IRIS-2 ont été mesurées le long de cinq profils axiaux et d'un profil transversal, au niveau du flux maximal. Pour les autres expériences, UMUS dans HFR et FUTURE dans BR2, des mesures ont été faites uniquement à la fin de l'irradiation. Un programme complet d'examens destructifs est systématiquement réalisé en fin d'irradiation (micrographie optique, MEB, microsonde...).

La figure 127 donne l'augmentation, en microns, de l'épaisseur des plaques en fonction du taux de combustion. Dans le cas de l'irradiation IRIS1, l'ensemble des examens post-irradiatoires témoigne du très bon comportement des plaques de charges élevées en UMo7 et UMo9 broyées (8 gU/cm³), au

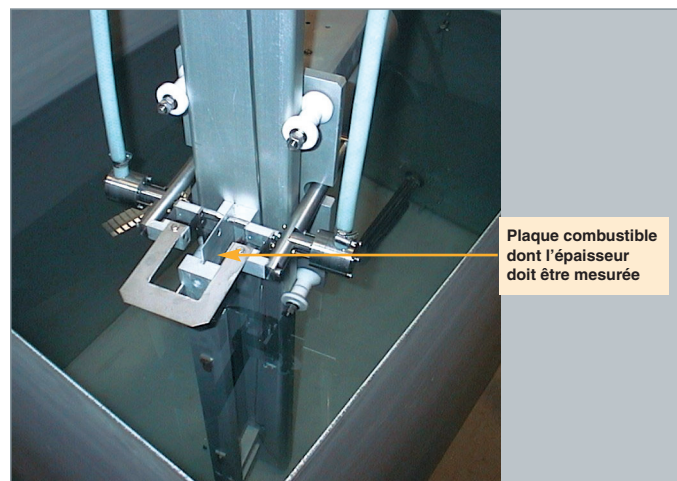


Fig. 126. Dispositif IRIS de mesure de l'épaisseur des plaques sur toute leur hauteur.

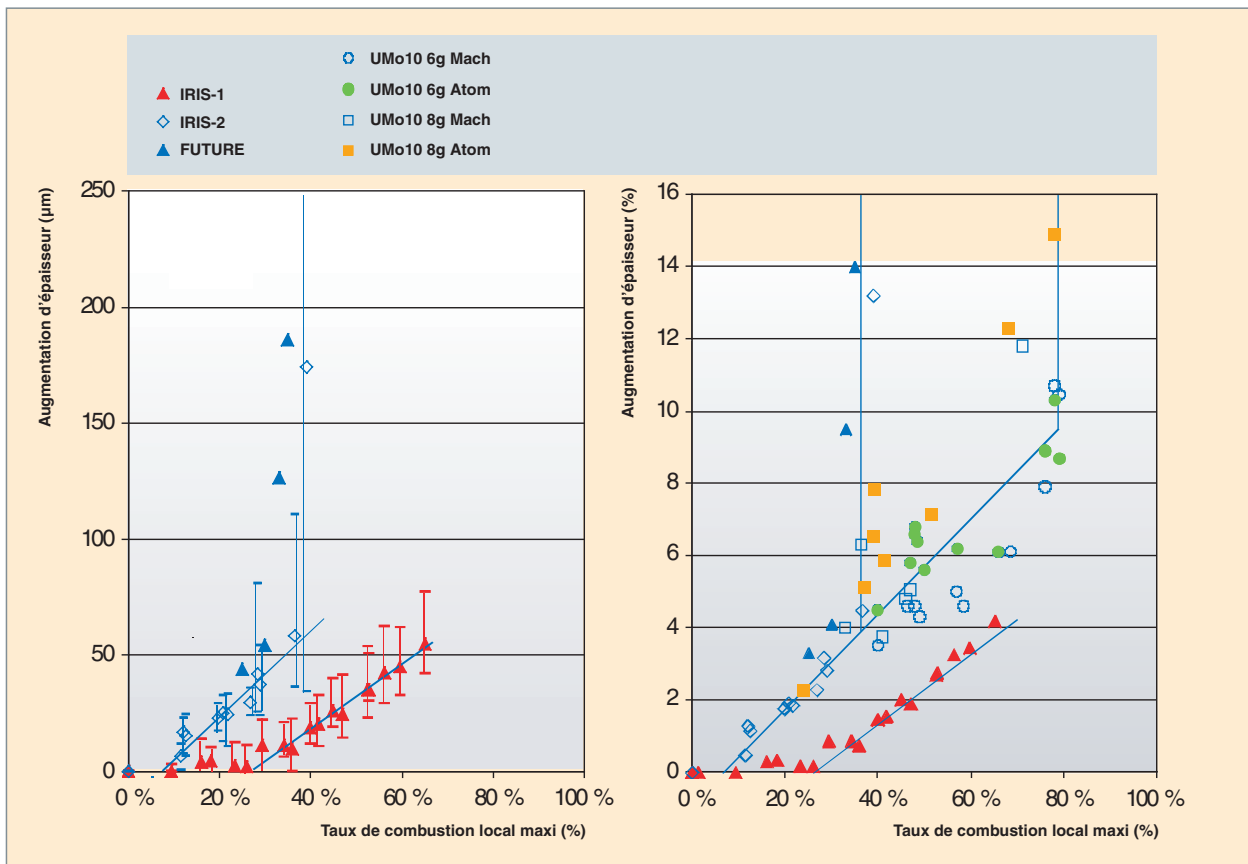


Fig. 127. Augmentation de l'épaisseur des plaques en fonction du taux de combustion a). Essais français, b). Essais intégrant les résultats de ANL.

gonflement modéré, jusqu'à un taux de combustion de 67 % (soit 240 jours équivalent pleine puissance). Aucune augmentation de l'épaisseur des plaques n'a été mesurée dans la gamme 0-25 % de tc, probablement en raison du taux de porosité de fabrication relativement élevé (~ 12 %). Pour des tc supérieurs, l'épaisseur des plaques varie linéairement, soit 1,4 microns (0,10 %) par pourcent de tc.

L'expérience, UMUS, réalisée dans HFR à PETTEN, a été arrêtée prématurément après deux cycles seulement, en raison d'une rupture des plaques enrichies à 35 %. Celle-ci était due à une oxydation excessive de la gaine et, en conséquence, à une surchauffe du combustible. Cette irradiation a montré que les conditions limites de fonctionnement de l'UMo étaient liées à l'épaisseur de la couche d'oxyde (boehmite).

Pour les deux irradiations les plus sollicitantes, IRIS2 et FUTURE, une augmentation anormale de l'épaisseur des plaques (fig. 127) a conduit à arrêter ces expériences, respectivement au bout de 4 cycles (tc max de 40 %) et 2 cycles (tc max de 33 %). À faible tc, l'augmentation de l'épaisseur des plaques varie linéairement (jusqu'à un taux de combustion de 35-40 %), de 1,8 microns (0,13 %) par pourcent de tc, soit ~ 30 % de plus que dans IRIS-1. Un cloquage (« *pillowing* »)

des plaques est ensuite observé au point chaud des plaques. Le taux de fission est de $\sim 4,8 \cdot 10^{14}$ f/cm³/s pour IRIS2 et $6,5 \cdot 10^{14}$ f/cm³/s pour FUTURE.

Les examens métallographiques effectués sur les deux types de combustibles, IRIS2 [4] et FUTURE [5] sont tout à fait comparables. L'origine du cloquage a été comprise, à ce jour, comme étant la concomitance de deux phénomènes :

1. La formation d'une interaction entre l'UMo et la matrice Al environnante (fig. 128), aux propriétés insatisfaisantes sous irradiation (propriétés thermomécaniques, rétention des gaz de fission...). En revanche, le bon comportement intrinsèque de l'UMo est confirmé ;
2. la formation d'une porosité lenticulaire à l'interface entre cette zone d'interaction et l'Al, où s'accumulent des produits de fission, essentiellement des gaz. Cette porosité coalesce jusqu'à former une cavité dommageable pour l'âme combustible (un déchirement). La pression des gaz y est certainement déterminante.

Des résultats comparables ont été obtenus par l'ANL sur des miniplaques irradiées dans ATR, notamment à haute température. Ces résultats ont conduit à revoir en profondeur le programme de qualification des combustibles UMo, tel qu'il avait

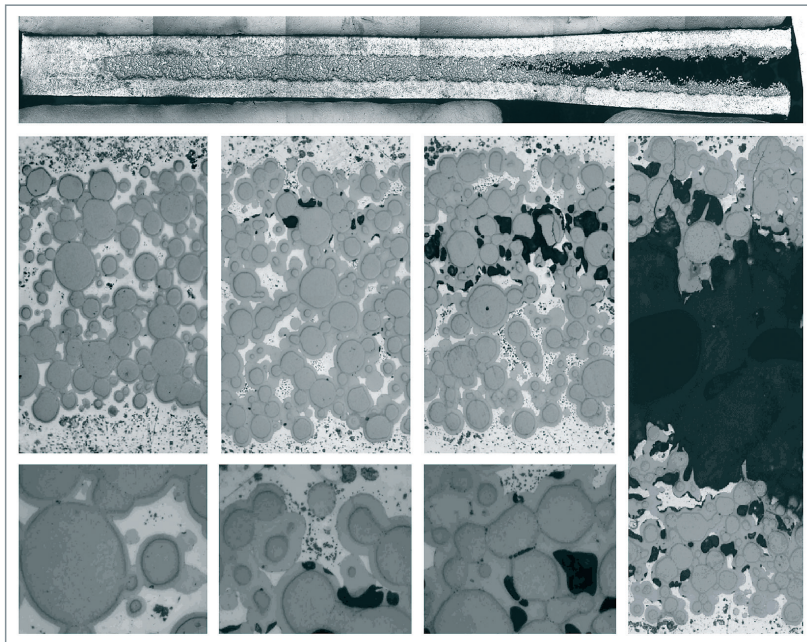


Fig. 128. Examens métallographiques réalisés au plan de flux maximal d'une plaque IRIS2 irradiée.

été prévu par les Français et les Américains, pour mettre à disposition des réacteurs un combustible traitable, malgré tout, avant l'échéance de 2010.

Code de calculs de comportement sous irradiation

Le CEA a développé l'application MAIA qui permet la simulation thermomécanique et physico-chimique, en conditions d'irradiation normales, incidentelles ou accidentelles, des plaques combustibles destinées aux réacteurs expérimentaux. Les phénomènes modélisés sont la thermique, la neutronique, la mécanique et la physico-chimie du combustible (oxydation externe du gainage, formation d'un composé d'interaction, formation des produits de fission). Le code est utilisé en soutien à l'interprétation des expériences ou à la vérification de certains critères de comportement du combustible en situations incidentelles/accidentelles.

Un programme d'acquisition de données expérimentales (propriétés thermiques et mécaniques) sur combustible avant irradiation et après irradiation permet de faire évoluer les lois et modèles à considérer, et de valider le code. Cette validation entre aussi dans le cadre d'un benchmark avec le code PLATE, développé par ANL. Les Argentins développent aussi leur propre code, PLACA.

Le code MAIA a évolué progressivement afin de mieux représenter les plaques de l'élément combustible RJH : plaque cintrée, nature des matériaux, évolution vers une modélisation 3D, afin de pouvoir prendre en compte les conditions aux limites, avec notamment l'effet mécanique des raidisseurs.

Le procédé de retraitement

AREVA NC a démontré la faisabilité du retraitement de l'UMo, dans le respect des règles établies au plan international pour ce qui concerne la spécification des verres. Les études et le développement se poursuivent, avec le soutien technique du CEA, pour confirmer et pour optimiser le procédé au niveau industriel. Des essais conduits à Atalante sur des plaques irradiées attestent de la retraitabilité des combustibles UMo [6].

Études réalisées au CEA sur l'UMo, depuis 2004

L'UMo en matrice Al pur, tel qu'envisagé initialement pour une qualification, a montré ses limites, lors de cette première phase du projet. Un programme de R&D (hors pile et en pile) a donc été mis en œuvre, visant à limiter et/ou à

modifier les propriétés de l'interaction qui se forme entre les particules UMo et la matrice d'aluminium.

Ainsi, le CEA travaille sur les quatre axes de recherche suivants, déclinés également sur la scène internationale :

- Modification de la matrice Al : ajout d'additifs (Si, Ti...), dispersion d'espèces pour piéger les gaz de fission...
- modification de la composition ou de la microstructure des particules UMo : alliages ternaires (avec Si, Zr, Nb), taille des grains, homogénéité du Mo...
- présence d'une barrière de diffusion à l'interface UMo/Al : revêtements, traitements thermo-chimiques...
- suppression totale de la matrice Al : concept monolithique.

La R&D mise en place [7] vise à sélectionner des concepts prometteurs et d'intérêt à tester sous irradiation. Des expériences en pile récentes ou en cours commencent à donner des résultats encourageants.

Parmi les remèdes testés, l'ajout de silicium dans l'Al, est la voie la plus largement étudiée. Deux nouvelles expériences françaises (voir tableau suivant) ont ainsi permis d'étudier son influence, dans IRIS3 (à base d'UMo atomisé) et IRIS-TUM²⁰ (à base d'UMo broyé). Le comportement des plaques en terme d'évolution d'épaisseur est comparé en figure 129.

20. Expérience réalisée pour le compte de TUM (Université technique de Munich).

Bilan (à mi-2007) des expériences françaises depuis 2004		
Expériences	IRIS-3	IRIS-TUM
Réacteur	OSIRIS (Fr)	OSIRIS (Fr)
Année	2005-2006	2006-2007
Nombre de plaques à l'échelle 1	4	4
Type de poudre UMo	atomisée	broyée
Enrichissement (% U 235)	19,75	49,5
Si contenu dans Al matrix (wt %)	0.3 ou 2.1	0 ou 2.1
Charge en uranium (gU/cm ³)	8,0	8,0
Porosité de fabrication (%)	1-2	8-9
Flux th.surf. max. début de vie (W/cm ²)	196	250-260
Temp. max du gainage début de vie (°C)	83	103
Vitesse du réfrigérant (m/s)	9	9
Situation de l'essai	terminé	terminé
Nombre de cycles d'irradiation	7	8
Durée totale (JEPP)	131	147
Taux de combustion moyen (% U 235) fin de vie	49	>56 (équivalent)
Taux de combustion max. local (% U 235) fin de vie	59	>74% (équivalent)

L'effet positif du Si est surtout avéré pour les combustibles fabriqués à partir de poudres atomisées (IRIS3), mais pour des quantités suffisantes en Si ($\geq 2\%$ en poids dans Al). Cet effet est moins manifeste lorsque le composé fissile est broyé. En effet, le comportement d'un tel combustible est satisfaisant, même en matrice Al pur, comme l'avait montré l'expérience IRIS1, mais confortée par l'expérience IRIS-TUM en conditions d'irradiation élevées (flux surfacique maximal de ~ 260 W/cm²).

Ces résultats motivent une autre voie prospectée lors des études hors pile et jugée comme étant prometteuse : la présence d'une couche oxyde à l'interface entre UMo/Al. Les poudres broyées sont, en effet, oxydées lors de l'opération mécanique de broyage. Ce paramètre pourrait agir favorablement sous irradiation en modifiant la cinétique et la nature de la phase d'interaction. Les examens post-irradiatoires à venir permettront d'avancer dans cette compréhension. Une nouvelle irradiation (IRIS4) testant cette solution oxyde est, par ailleurs, programmée pour fin 2007. Elle consiste à tester l'influence d'une couche oxyde périphérique, contrôlée (en épaisseur, nature...) formée par traitement thermo-chimique des particules d'UMo atomisées.

Enfin, le concept monolithique est une alternative au concept dispersé UMo/Al. Il met en œuvre un feuillard d'UMo gainé pour réduire les surfaces d'échanges UMo/Al (la gaine dans ce cas). Ce concept se heurte à des difficultés d'ordre technologique, notamment la fabrication du feuillard UMo et du gainage de l'ensemble. De nouveaux procédés de fabrication ont été développés depuis 2005 par AREVA-CERCA, soutenu par le CEA. L'irradiation de plaques d'UMo monolithique à l'échelle 1 devrait démarrer fin 2007, dans OSIRIS, avec l'expérience IRIS5. Jusque-là, seules des miniplaques (quelques centimètres carrés) ont été testées sous irradiation par ANL.

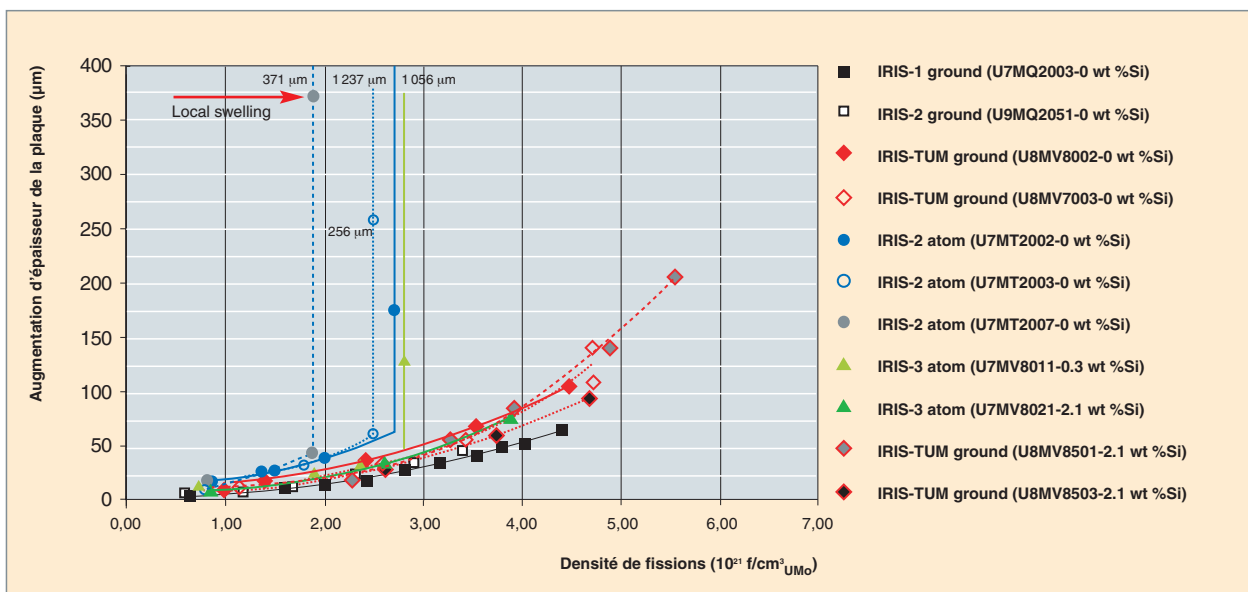


Fig. 129. Augmentation comparée de l'épaisseur des plaques testant ou non des remèdes au combustible dispersé [8].

Le combustible pour le démarrage du réacteur Jules Horowitz (RJH) restera l' U_3Si_2/Al

L'évolution des combustibles des réacteurs de recherche résulte, pour l'essentiel, de la mise en application des directives en matière de non-prolifération. Pour les réacteurs de puissance modérée tels qu'OSIRIS, il a été possible d'utiliser le combustible U_3Si_2 qualifié dans un cadre international. Pour les réacteurs à performances élevées, il est nécessaire d'augmenter significativement la densité du combustible (aux alentours de 8 gU/cm³). L'alliage d'UMo est, à ce jour, le meilleur candidat, pour ses qualités intrinsèques indéniables telles que sa densité, sa retraitabilité, son aptitude à la rétention des produits de fission. Il apparaît donc comme le combustible d'avenir, à la fois pour répondre aux exigences des réacteurs performants et pour assurer une fin de cycle industrielle à l'ensemble des réacteurs qui opteront pour cette solution.

Cependant, la maturité de l'UMo n'est pas suffisante pour assurer le démarrage du RJH, dans un objectif de divergence en 2014. Aussi, le projet RJH, entré en phase de développement en 2006, a-t-il fait le choix [2] de retenir comme combustible de démarrage l' U_3Si_2 (dispersé en matrice Al), déjà largement utilisé dans de nombreux réacteurs (OSIRIS, HFR, JMTR,...). Sa bonne tenue doit être démontrée dans les conditions spécifiques au RJH. La charge en uranium et l'enrichissement retenus sont respectivement de 4,8 g/cm³ (densité qualifiée dans le NUREG) et de 27 % d'U 235 (en compensation de la baisse de densité). Un programme de qualification en conditions normales RJH, ainsi qu'un programme de justification en conditions incidentelles et accidentelles, ont été lancés. La première expérience du programme de qualification a été réalisée, avec succès, à la température de point chaud du RJH (140 °C), expérience SHARE dans BR2. La construction d'une boucle hydraulique dans BR2 est également en cours (boucle EVITA) pour des tests prévus entre 2008 et 2010.

► Références

- [1] A. GLASER, « *About the Enrichment Limit for Research Reactor Conversion : why 20 %* », 27th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR), Boston, Massachusetts, November 6-10, 2005.
- [2] D. IRACANE, « *JHR project status* », 11th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM) and Meeting of the International Group on Reactor Research (IGORR), Lyon, France, 11-15 March 2007.
- [3] J.-M. HAMY, P. LEMOINE, F. HUET, C. JAROUSSE, J.-L. EMIN « *The French UMo group contribution to new LEU fuel development* », 9th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM), Budapest, Hongrie, 10-13 April 2005.
- [4] F. HUET, J. NOIROT, V. MARELLE, S. DUBOIS, P. BOULCOURT, P. SACRISTAN, S. NAURY, P. LEMOINE, « *Post-irradiation examinations on UMo full sized plates – IRIS2 experiment* », 9th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM), Budapest, Hongrie, 10-13 April 2005.
- [5] A. LEENAERS, S. VAN DEN BERGHE, E. KOONEN, C. JAROUSSE, F. HUET, M. TROTABAS, M. BOYARD, S. GUILLOT, L. SANNEN A, M. VERWERFT, « *Post-irradiation examination of uranium-7 wt% molybdenum atomized dispersion fuel* », Journal of Nuclear Materials 335 (2004), 39-47.
- [6] N. HERLET, G. FERLAY, J.-P. DANCAUSSE, A. JUVENELLE, « *Reprocessing U-Mo spent fuels : dissolution experiments on non-irradiated and irradiated materials* », 9th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM), Budapest, Hongrie, 10-13 April 2005.
- [7] S. DUBOIS, F. MAZAUDIER, J.P. PIRON, P. MARTIN, J.C. DUMAS, F. HUET, H. NOËL, O. TOUGAIT, P. LEMOINE, C. JAROUSSE, « *Out of pile French research Program on the UMo/Al system: First results* », 9th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM), Budapest, Hongrie, 10-13 April 2005.
- [8] S. DUBOIS, J. NOIROT, J.-M. GATT, M. RIPERT, P. LEMOINE, P. BOULCOURT, « *Comprehensive overview on IRIS program: irradiation tests and PIE on high density UMo/Al dispersion fuel* », 11th International Topical Meeting on Research Reactor Fuel Management (RRFM) and Meeting of the International Group on Reactor Research (IGORR), Lyon, France, 11-15 March 2007.

Alain BALLAGNY, Patrick LEMOINE,

Direction de la simulation et des outils expérimentaux

et Sylvie DUBOIS,

Département d'études des combustibles

Un outil pour les études sur le combustible : le réacteur Jules Horowitz (RJH)

Le comportement des combustibles nucléaires dans les réacteurs de puissance est un domaine de R&D très important, nécessitant des expériences instrumentées susceptibles de reproduire les fissions et endommagements de ces combustibles à l'échelle d'un ou quelques crayons. Ces expériences sont menées dans des réacteurs de recherche, connus aussi sous le nom anglais de « *Material Testing Reactor (MTR)* ».

Depuis l'arrêt du réacteur SILOE (Grenoble), fin 1997, la France dispose d'un seul réacteur de ce type : OSIRIS (Saclay) dont l'arrêt devrait intervenir au début de la décennie 2010, du fait de son obsolescence technique (il a divergé en 1966). C'est pourquoi le CEA étudie, en liaison avec ses principaux partenaires français et internationaux un nouveau réacteur de recherche : le réacteur Jules Horowitz (RJH), du nom du grand physicien. Ce réacteur sera construit à Cadarache et divergera fin 2013. Associé aux laboratoires de préparation et d'examen des échantillons de combustible (LEFCA et LECA-STAR), le réacteur RJH constituera une plate-forme de recherche essentielle pour l'optimisation et la sûreté des combustibles existants et le développement des combustibles innovants requis pour les systèmes du futur.



Jules Horowitz est l'un des grands scientifiques de ce temps. Tour à tour chercheur, politique et industriel, il a eu l'intuition des grands projets nucléaires français. Cet émigré polonais, devenu Français et passionné de l'indépendance énergétique de son pays d'adoption, a été une figure majeure du nucléaire au plan mondial. Dès 1948, physicien de haut vol, il publie la première étude théorique sur la désintégration du méson mu. Il crée ensuite de toutes pièces la physique des réacteurs, spécialement celle des réacteurs à neutrons thermiques. Il est à l'origine, avec d'autres ingénieurs du CEA et d'EDF, du développement de la filière uranium naturel-graphite-gaz carbonique. Il aura du mal, d'ailleurs, fidèle à ses premières amours, à accepter l'abandon de cette filière, mais il défendra vite les nouveaux choix avec le même enthousiasme.

Les expériences d'irradiation « combustibles » dans le RJH

Pour le développement et la qualification de combustibles, on peut distinguer deux types d'expériences. Le premier type concerne les matériaux inertes qui assurent le confinement de la matière fissile (gaine des combustibles REP, céramiques d'enrobage pour les combustibles particuliers). Le second type concerne le système constitué de la matière fissile avec les matériaux de confinement.

Expériences concernant les matériaux de confinement

Il s'agit d'établir les lois de comportement mécanique macroscopique des gaines métalliques ou des céramiques d'enrobage sous la triple sollicitation mécanique, thermique et d'irradiation.

Les progrès obtenus dans la compréhension des mécanismes mis en jeu permettent de compléter les essais macroscopiques par des expériences plus fines améliorant, en association avec la simulation numérique, la capacité à extrapoler les résultats.

Un enjeu industriel et scientifique important est l'étude du comportement viscoplastique sous irradiation de ces matériaux. Dans l'espace des paramètres vitesses de déformation, température et intensité du flux radiatif, le couplage des mécanismes de production et de diffusion des hétérogénéités et la dynamique des dislocations détermineront les lois de fluage qui sont importantes pour la durée de vie du combustible et la gestion des transitoires incidentels ou accidentels.

Les essais post-irradiation sont essentiels, mais la nature couplée des mécanismes impose également des expériences sous flux, en réacteur de recherche.

À titre d'illustration, dans le cas des gaines de combustibles, les études sur le fluage d'irradiation conduisent à proposer sur le RJH, en complément des essais classiques qui seront toujours nécessaires, un dispositif expérimental permettant :

- La mise en place, sous flux, d'une contrainte bi-axiale (rendue nécessaire par la nature anisotrope des matériaux tels que le zirconium) ;

- le contrôle en ligne de cette contrainte mécanique ; il s'agit de modifier et mesurer en ligne la contrainte pour explorer les différents états de microstructure par lesquels passe le matériau ;
- un contrôle rigoureux des gradients thermiques, condition nécessaire à la bonne interprétation des données. Cette maîtrise des gradients est un enjeu technologique fort, du fait des taux d'irradiation importants qui sont visés (une quinzaine de dpa, « déplacements par atome » par an), compte tenu des échauffements parasites dus au flux gamma ambiant. Une technologie de circulation forcée de caloporteur NaK, embarquée dans le dispositif même, est en cours de développement (fig. 130).

Pour les réacteurs à eau pressurisée et à eau bouillante, la corrosion est un paramètre de couplage supplémentaire dont la prise en compte requiert le contrôle précis de la tempéra-

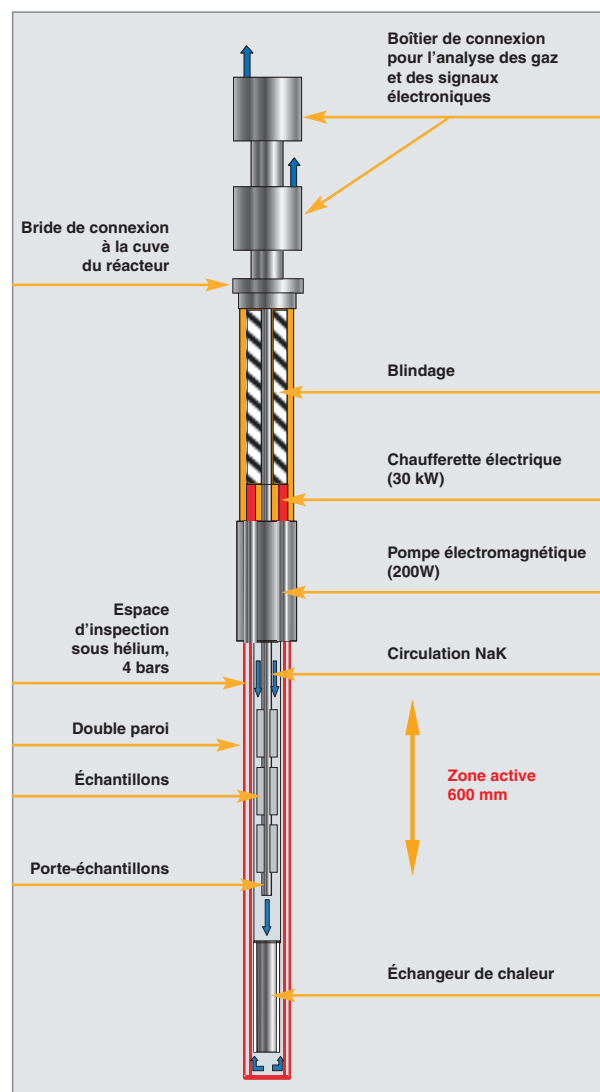


Fig. 130. Expérience de viscoplasticité avec contrôle en ligne des contraintes mécaniques bi-axiales.

ture, des conditions d'irradiation (sur l'échantillon comme sur le caloporteur à cause des effets de la radiolyse) et des contraintes mécaniques. La définition de protocoles pertinents, le développement d'une instrumentation pour mesurer la chimie locale et la propagation de fissures font l'objet de collaborations européennes.

Dans le domaine des matériaux à haute température (par exemple, des céramiques SiC-SiC), il s'agit d'abord de mener des essais dans des gammes de températures élevées (1 000 °C et plus), ce qui implique des développements technologiques en instrumentation. À terme, des expériences avec contrôle en ligne des contraintes mécaniques seront aussi nécessaires.

Expériences concernant le système combustible

Il s'agit ici d'acquérir la connaissance du comportement du combustible en fin de vie (forts **taux de combustion***) et lors des différents transitoires incidentels et accidentels.

Les dispositifs et les charges expérimentales utilisés pour effectuer les irradiations de combustibles dans le RJH seront notamment conçus pour :

- Accueillir du combustible pré-irradié en réacteur et re-conditionné en charge expérimentale. Ce combustible et son porte-échantillon peuvent être instrumentés (thermocouples, capteurs de pression, mesures de profil...);
- accélérer les expériences, afin d'atteindre rapidement les taux de combustion ou de **fluence*** visés, sans perturber l'importance relative des phénomènes physiques gouvernant l'évolution de la matrice fissile. Pour la physique des matériaux, plus que la représentativité du spectre neutronique, c'est bien le taux de fission des actinides et le taux d'endommagement des matériaux inertes (**dpa***) qu'il s'agit de reproduire. Dans de nombreuses situations pour les REP, RTHT ou RNR-G, il est critique d'assurer le bon rapport taux de fission *versus* dpa pour que l'expérience soit représentative de l'interaction entre les matières fissile et inerte. Le contrôle de ce rapport impose l'emplacement expérimental dans le RJH et la conception du dispositif. Des dispositifs convertisseurs peuvent être utilisés pour modifier localement le spectre neutronique « vu » par la charge expérimentale ;
- reproduire au niveau de la charge expérimentale la plage de conditions environnementales que peut voir le combustible en réacteur (flux et spectre neutronique, puissance volumique et/ou température, chimie, nature, pression et vitesse du caloporteur, etc.). Cette plage sera reproduite au niveau de l'échantillon par des variations programmées et progressives de ces paramètres (transitoires, cyclages...). Là encore, la qualité des expériences passe par un contrôle extrêmement précis, par exemple des gradients thermiques au niveau de l'échantillon combustible ;

- favoriser l'instrumentation en ligne (températures, pressions, suivi des gaz de fission issus du crayon combustible...). Ce suivi en ligne des mesures est un élément essentiel de la conception du RJH qui disposera d'une salle de contrôle réservée aux expérimentateurs.

Selon le type de combustible, l'irradiation sera conduite dans le réflecteur du réacteur (le réflecteur, constitué de blocs de béryllium, entoure le cœur pour en limiter les fuites de neutrons) ou dans le cœur (par exemple, pour des études concernant les filières à neutrons rapides, lorsqu'un nombre élevé de dpa est requis). La puissance pourra être ajustée soit par déplacement de la charge par rapport au cœur, soit par un écran absorbant. Cet écran pourra également rééquilibrer le spectre neutronique pour respecter le ratio dpa / taux de fission.

Les expériences « combustible » dans le RJH s'appuieront sur des moyens d'analyse spécifiques, complémentaires des moyens d'essais sous irradiation, tels que le laboratoire d'analyse des produits de fission, les bancs d'examen par scrutation gamma et par neutronographie et la cellule chaude d'examen (non destructif) du combustible.

Dans l'exemple des réacteurs à eau, ces moyens permettent de mener efficacement les expériences décrites ci-après.

La distribution et le relâchement des gaz de fission

La connaissance des mécanismes gouvernant la migration des produits de fission (et notamment des gaz), permettant ensuite une approche mécaniste des phénomènes, est un point-clé dans l'optimisation de l'utilisation des combustibles en réacteur, et plus spécialement de leur durée de vie. La mesure des quantités de gaz de fission stables et radioactifs relâchées hors de la matrice en fonctionnement stable, ainsi que des cinétiques d'émission lors de transitoires ou de cycles (puissance et/ou température), sont les outils privilégiés pour obtenir soit un « instantané » de l'état de la microstructure, soit une horloge cadencant les phénomènes.

Ces mesures sont utilement complétées par des examens destructifs post-irradiations (relâchement des gaz contenus dans la matrice lors de traitements thermiques, analyses à la micro-sonde, etc.).

La thermomécanique de la charge expérimentale

Les phénomènes physiques gouvernant l'évolution de la matrice fissile sous irradiation à l'échelle microscopique dépendent, en général, beaucoup de la température. L'accumulation aux joints de grains du matériau et le relâchement dans les volumes libres des gaz de fission en sont des exemples clés. La distribution de gaz résultante conditionne l'évolution macroscopique de la géométrie au cours du temps due à la densification, les gonflements gazeux et solide et, *in fine*, l'interaction avec la gaine (ou l'enrobage) constituant la première barrière de confinement des produits de fission.

L'interaction combustible-caloporteur et le relâchement des gaz de fission en cas de perte d'intégrité de la première barrière

L'enjeu de cette thématique est avant tout opérationnel. Cette thématique conditionne l'exploitation d'un réacteur de puissance, au travers des spécifications techniques d'exploitation relatives à l'activité du circuit caloporteur primaire. La connaissance des niveaux d'activité en produits de fission qui seront atteints dans ce circuit est, en effet, d'une importance capitale pour la conduite du réacteur : dosimétrie du personnel, conditions d'intervention en arrêt de tranche, maîtrise des activités rejetées dans les effluents et, *in fine*, démantèlement des installations.

En outre, la compréhension du comportement des volumes libres internes de l'« élément » combustible (crayon, particule...) en situation d'interaction avec le caloporteur permet également de définir les réactions physico-chimiques survenant à la surface du combustible et de quantifier une éventuelle cinétique de dégradation, pouvant s'accompagner d'un relâchement de matière fissile (en phase d'irradiation ou de stockage).

Le comportement lors de certaines situations incidentelles (« rampes » de puissance) ou accidentelles (accident de perte de réfrigérant...)

Des expériences à effets séparés permettent de mener les études nécessaires pour la sûreté des réacteurs industriels. Il s'agit de reproduire les mécanismes impliqués dans les transitoires de réactivité et/ou d'échauffement. Même si les paramètres de l'incident ou de l'accident ne sont pas totalement reproduits, ces essais permettent d'activer un nombre limité de mécanismes physiques, afin de quantifier leurs effets individuels et de mettre en évidence les différents couplages. L'interaction entre le combustible et la première barrière, ainsi que la cinétique de relâchement des gaz de fission et son éventuel effet sur la résistance mécanique du combustible, sont des études privilégiées à conduire à travers ce type d'expérience.

Dans le cas des réacteurs à gaz, la mesure en ligne des produits de fission est l'outil central pour développer et qualifier les combustibles à particules qui imposent des approches statistiques sur la perte de confinement.

Pour les réacteurs rapides refroidis au gaz, des expériences de combustibles particulières en cœur du RJH permettent de simuler à la fois le bon niveau de flux rapide et thermique. Cela nécessitera l'ajout d'écrans pour limiter l'intensité du flux de neutrons thermiques.

Apport d'un laboratoire des produits de fission pour l'étude du comportement des combustibles nucléaires

La disponibilité en ligne d'un laboratoire des produits de fission est un complément essentiel à la capacité expérimentale du RJH.

Le combustible nucléaire, quelle que soit la filière de réacteur, est un produit qui évolue profondément au cours de son séjour dans le flux neutronique. Les produits de fission sont des éléments chimiques très variés (gazeux, solides volatils et non volatils), atteignant des teneurs largement supérieures à ce qu'on peut appeler des impuretés. Parmi ceux-ci, les gaz rares (xénon et krypton) jouent un rôle particulier, tant en raison de leur abondance (environ 1/3 de tous les produits de fission) que de leur comportement dans le combustible. Ils diffusent, en effet, facilement dans le matériau, en raison des conditions thermiques locales et créent soit des nano- ou micro-bulles au sein des grains, soit des bulles aux joints de grains. Une faible part s'échappe du combustible et devient disponible dans les porosités ouvertes et les volumes libres internes de l'élément combustible.

La quantité et la distribution de ces gaz de fission sont des facteurs déterminants limitant la durée de vie des combustibles en réacteur. Leurs effets concernent surtout :

- La création de barrières thermiques, du fait de leur fort pouvoir isolant (accumulations de bulles, ouvertures de jeux), provoquant une augmentation de la température du combustible ;
- une augmentation de la pression interne, conduisant à des contraintes mécaniques sur la première barrière ;
- la constitution d'un terme source, en cas d'accident, en raison du caractère immédiatement disponible et radioactif d'une fraction de ces gaz rares.

L'optimisation des combustibles nucléaires (augmentation de la durée de vie, meilleure rétention des produits de fission, en cas d'accident...) passe, en priorité, par une meilleure maîtrise des mécanismes régissant le comportement des gaz de fission (distribution et migration). Une stratégie expérimentale privilégiée pour accéder à la compréhension de ces mécanismes consiste à provoquer une sollicitation externe sur le matériau combustible, comme un transitoire de puissance ou thermique, et d'analyser la réponse du matériau à cette sollicitation. La mesure repose alors :

- Soit sur le caractère radioactif de certains d'entre eux, qui constitue une horloge naturelle. La loi de dépendance entre le niveau de relâchement et la période radioactive permet, en effet, d'identifier les mécanismes en cause ;

- soit sur les fractions relâchées globales des gaz de fission stables, permettant d'identifier la nature des « réservoirs » de gaz qui se vident au cours de la sollicitation (fig. 131).

Le laboratoire des produits de fission associé au RJH offre ainsi un ensemble des moyens d'analyse, nécessaires à l'acquisition de ces connaissances, placés en cellules dans les casemates du bâtiment réacteur. L'échantillon en cours d'irradiation est équipé d'une ligne courte de balayage interne qui permet de récupérer les gaz radioactifs dégagés dont la période excède quelques minutes. La composition du mélange en ses différents nucléides est alors accessible soit par spectrométrie gamma (en ligne sur la tuyauterie ou différée, à partir de pièges), soit par chromatographie et spectrométrie de masse.

Ce laboratoire permet, en outre, la mesure des produits de fission relâchés, autres que les gaz, ainsi que des produits d'activation, dans la mesure où une partie du fluide caloporteur du dispositif d'irradiation transite par cette installation. Les mesures sont essentiellement basées sur la spectrométrie gamma de ce fluide. Des moyens d'épuration des circuits permettent de séparer les produits de fission selon leur nature physico-chimique et de les stocker en vue d'analyses complémentaires ultérieures (spectrométrie bêta ou alpha, spectrométrie d'absorption...). Des domaines d'études aussi variés que le relâchement d'activité hors d'un combustible en situation de perte d'étanchéité, la corrosion de composants sous flux neutronique, la mesure d'éléments spécifiques (tritium, hélium...), ou bien les bilans d'activité dans un dispositif après une séquence accidentelle appliquée à la charge expérimentale, deviennent accessibles grâce au laboratoire des produits de fission.

Les expériences menées dans le réacteur RJH et ses laboratoires associés relèveront, pour une part, de programmes de recherche internationaux d'intérêt commun et, pour une part, de programmes au profit d'industriels européens ou étrangers.

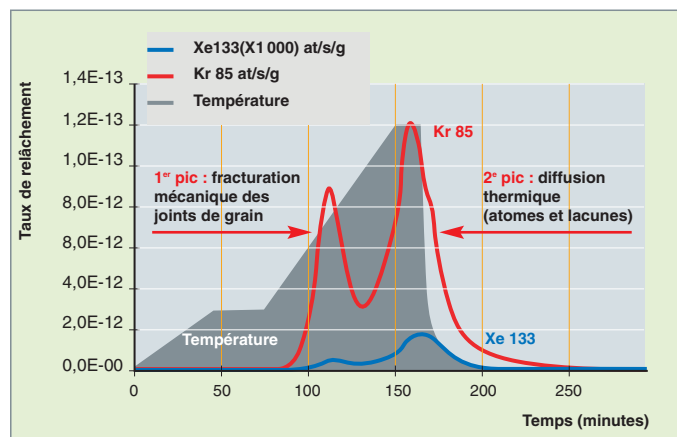


Fig. 131. Taux de relâchement des gaz de fission relâchés en fonction de la température du combustible.

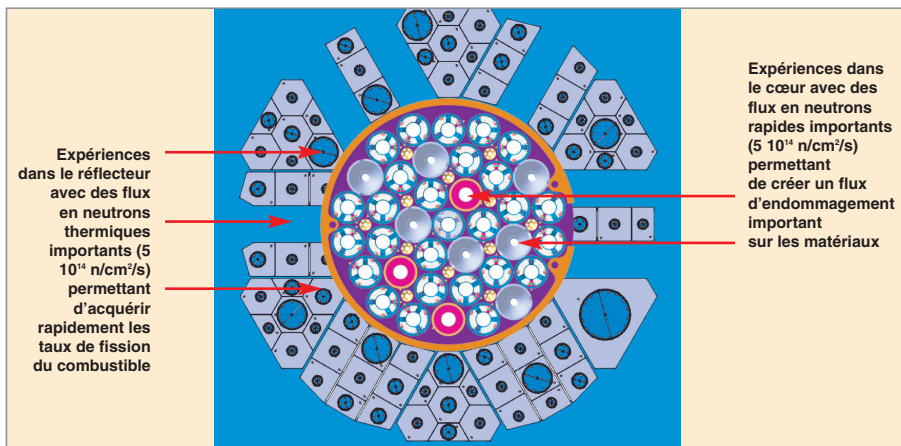


Fig. 132. le cœur du RJH est contenu dans un cylindre d'une soixantaine de cm de diamètre et de hauteur.

Le RJH, outil flexible

Le RJH, dont la divergence est prévue en 2013, est un réacteur de type piscine, à caisson. Sa puissance thermique sera de 100 MW. Le cœur, très compact (cylindre d'une hauteur et d'un diamètre de 60 cm), est constitué d'un caisson enfermant un casier contenant une quarantaine d'éléments combustibles. Ces derniers sont des cylindres de 600 mm de hauteur et de 95 mm de diamètre et sont constitués de plaques cintrées (3 fois 8 par élément), assemblées entre elles et ménageant les canaux nécessaires à la circulation de l'eau de refroidissement. Le cœur, modéré par l'eau, sera garni de réflecteurs en béryllium (fig. 132).

L'eau de refroidissement, circulant de bas en haut, est injectée à la pression de 14 bars et à la température de 25 °C et ressort à la pression de 5 bars et à la température de 35 °C.

Pour obtenir les performances en utilisant un uranium faiblement enrichi, le combustible, en cours de développement, sera un combustible à plaques à base d'alliage uranium-molybdène (à 8 % de Mo), dispersé dans une matrice en aluminium et gainé en alliage d'aluminium.

Le cœur est capable de produire des flux élevés de neutrons rapides (énergies supérieures à 1 MeV) et de neutrons thermiques (énergies inférieures à 1 eV), pouvant atteindre chacun $5 \cdot 10^{14}$ n/cm²/s. Localement, un ajout de matière fissile nourricière permet de modifier et d'augmenter le flux de neutrons reçu par la charge expérimentale.

Le RJH peut accueillir une vingtaine d'expériences simultanées portant sur l'optimisation des matériaux et combustibles en usage ou en développement pour les systèmes nucléaires du futur.

Par le choix de l'emplacement de l'expérience et par des dispositions locales dans le cœur ou dans le réflecteur, le flux

de neutrons thermiques induisant les fissions et le flux de neutrons rapides et donc l'endommagement des matériaux confinant la matière fissile sont adaptés pour simuler le comportement du combustible dans les différentes filières technologiques. La densité de puissance du cœur du RJH permet de produire un flux de neutrons rapides très largement supérieur à celui créé dans les réacteurs à neutrons thermiques, du

même ordre de grandeur que celui des réacteurs rapides refroidis au gaz. Pour la technologie des réacteurs rapides refroidis au sodium, les expériences très instrumentées menées dans le RJH compléteront celles, plus globales, menées dans des réacteurs de la « filière » comme PHÉNIX ou MONJU. Les boucles d'essai (en eau pressurisée, en conditions bouillantes, en gaz, en sodium) permettent de représenter localement les conditions d'environnement des différentes filières de réacteurs de puissance.

La conception du bâtiment réacteur (fig. 133) privilégie une zone expérimentale importante pour conduire les expériences d'irradiation. Le comportement des combustibles dans des expériences simulant des situations normales mais aussi incidentelles et accidentelles est suivi grâce à une instrumentation importante. Couplée à la modélisation, cette instrumentation permet d'extrapoler les résultats pour les situations inaccessibles à l'expérimentation directe. Le RJH est conçu pour mener en standard la mesure en ligne des produits de fission émis par les charges expérimentales combustibles.

Les mesures en ligne et la mise en œuvre de conditions d'environnement réalistes pour différentes filières imposent un ensemble de casemates disposé sur trois niveaux dans le bâtiment réacteur, au plus près de la zone d'irradiation.

L'unité nucléaire (fig. 134) est constituée du bâtiment réacteur associé à un bâtiment des auxiliaires nucléaires permettant de mener l'ensemble de l'expérimentation : préparation de la charge dans le dispositif expérimental, irradiation, gestion de l'aval de l'expérience (mesures non destructives, extraction de la charge expérimentale – éventuellement sollicité jusqu'à sa rupture – pour envoi aux laboratoires d'analyse (LECA-STAR...)).

Daniel IRACANE,

Direction de la simulation et des outils expérimentaux

et Daniel PARRAT,

Département d'études des combustibles

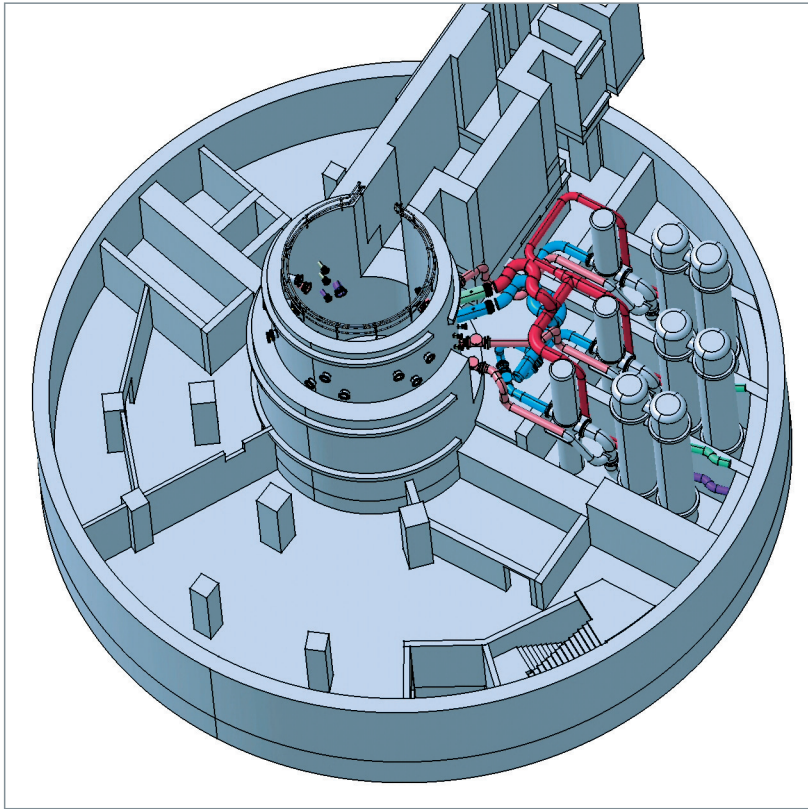


Fig. 133. Le bâtiment réacteur.

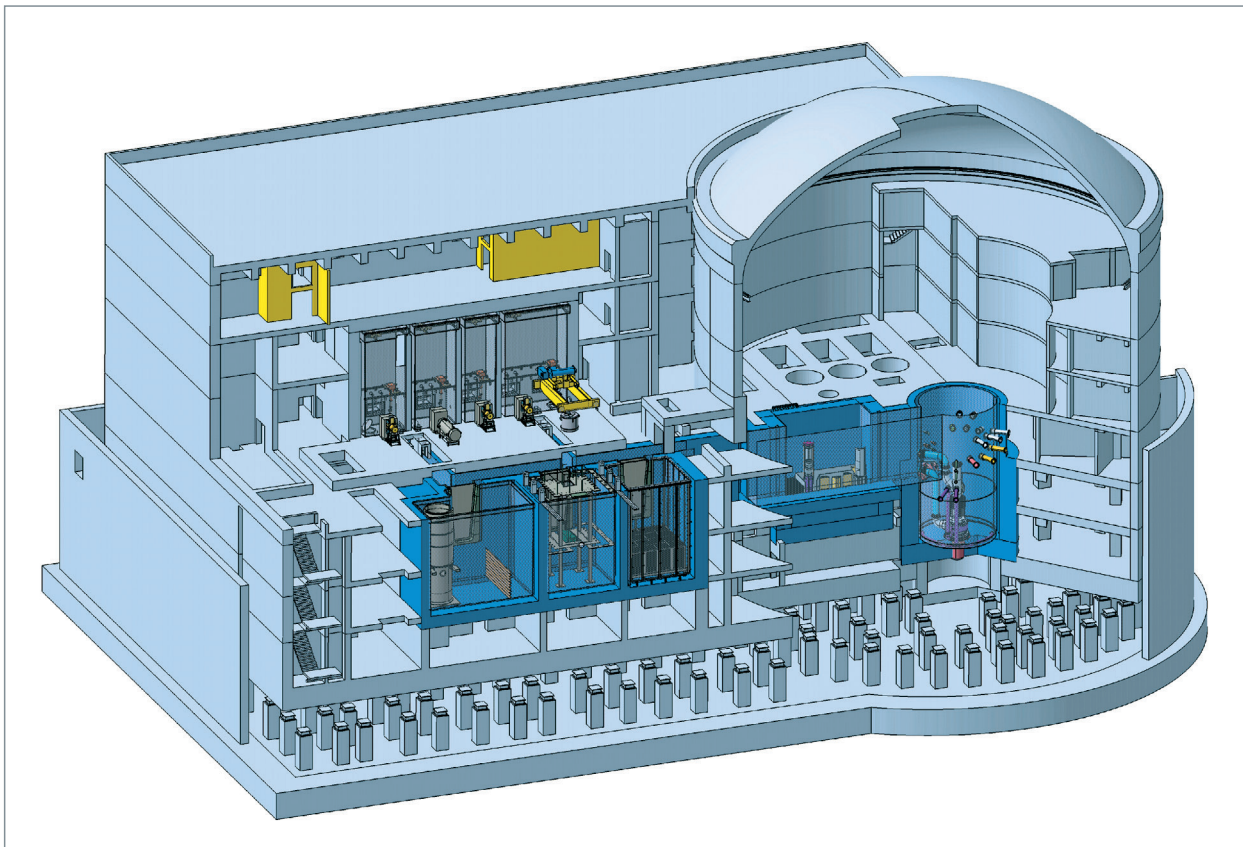
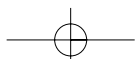
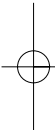
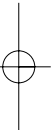
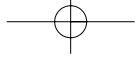
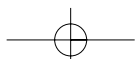
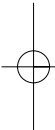
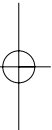
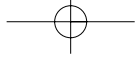


Fig. 134. L'unité nucléaire.





Glossaire – index

Actinides : éléments terres rares de numéro atomique compris entre 89 et 103. Ce groupe correspond au remplissage de la sous-couche électronique 5f et 6d. Les actinides sont dotés de propriétés chimiques très voisines entre elles. **7, 8, 31, 34, 77-81, 84, 93, 99, 100, 101, 123, 124.**

Actinides mineurs : noyaux lourds formés dans un réacteur par capture successive de neutrons, à partir des noyaux du combustible. Ces isotopes sont principalement le neptunium (237), l'américium (241, 243) et le curium (242, 244, 245). **8, 78-80, 84, 93, 99-101, 123, 124.**

Activation : action tendant à rendre radioactifs certains nucléides, en particulier au sein des matériaux de structure des réacteurs, par bombardement par des neutrons ou d'autres particules. **21, 33, 38, 138.**

Additif (de frittage) : élément chimique ajouté à une poudre afin de contrôler son frittage et sa **microstructure***. **15, 47, 49.**

Amibe (effet) : migration du noyau d'une particule de combustible sous l'effet d'un gradient de température. **110, 111, 119-121.**

ANDRA : Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs. **5, 85.**

APRP : accident par perte de réfrigérant primaire. Ce type d'accident est retenu comme dimensionnant pour la sûreté des réacteurs à eau. **51, 58-61.**

Assemblage : dans le cœur d'un réacteur à eau, les **crayons*** combustibles sont groupés en faisceaux dotés d'une bonne rigidité et positionnés avec précision dans le cœur du réacteur. C'est l'ensemble de cette structure, regroupant une à quelques centaines de crayons et chargée d'un seul tenant dans le réacteur, qui est appelée **élément combustible*** ou assemblage. **7-13, 35, 36, 38, 51-57, 71-75, 87-89, 95-97.**

Autoprotection : phénomène d'absorption préférentielle des neutrons par les atomes lourds en périphérie d'une masse de combustible. Selon la géométrie du combustible, cette absorption peut réduire plus ou moins la pénétration des neutrons à l'intérieur du combustible. **17, 103.**

Barn : unité utilisée pour mesurer une **section efficace***. (1 barn = 10^{-24} cm²). **99.**

Barre de commande : barre ou ensemble de tiges solidaires mobiles contenant une matière absorbant les neutrons et qui, suivant sa position dans le cœur d'un réacteur nucléaire, influence sur sa réactivité. Voir « groupe de commande ou de contrôle ».

Bore : élément utilisé, entre autres, comme absorbant neutronique dans les réacteurs nucléaires. **71, 72, 107.**

Burn-up : (voir **Combustion massique***).

CABRI : réacteur de recherche pour l'étude des accidents. **63-65, 91, 93.**

Caloporteur : fluide (gaz ou liquide) utilisé pour extraire la chaleur produite par les **fissions***. Dans un **réacteur à eau sous pression***, l'eau joue à la fois le rôle de caloporteur et celui de modérateur. **7, 35, 41, 52, 93, 103, 119, 123-125, 136-138.**

Capture : capture d'un neutron par un noyau. La capture est dite « radiative » si elle est suivie par une émission immédiate d'un rayonnement gamma. Elle est dite « fertile » si elle donne naissance à un noyau fissile. **17, 19, 35, 72, 88, 95, 99, 100, 123.**

Coefficient de réactivité : variation du **facteur de multiplication*** résultant du fonctionnement d'un réacteur, c'est-à-dire des changements de température et de composition dus au dégagement d'énergie et à l'irradiation **neutronique***. **72.**

Coefficient de température : coefficient qui traduit la variation du **facteur de multiplication*** des neutrons dans un réacteur, lorsque sa température change. Un coefficient de température négatif est un critère important de stabilité du cœur. **72.**

Combustible : substance constitutive du **cœur*** d'un réacteur nucléaire, contenant les éléments fissiles* qui entretiennent la réaction en **chaîne*** en son sein. Voir l'ensemble de la monographie.

Combustible irradié : assemblages combustibles extraits d'un réacteur nucléaire après une période de production utile d'énergie. On dit aussi « combustible usé ». **26, 27, 63, 65, 69, 78, 82, 116.**

Combustible à particules : voir chapitre « Le combustible à particules » (p. 103).

Combustion massique (ou **burn-up***, ou encore, « taux de combustion ») : Énergie totale libérée par unité de masse dans un combustible nucléaire. Généralement exprimé en mégawatts x jours par tonne. **71-75, 93, 113, 117, 119.**

Conversion : transformation chimique de l'uranium en vue de son enrichissement, de son entreposage, ou pour la fabrication du combustible nucléaire. **13, 103, 127-129, 34.**

Corium : mélange de matériaux fondus résultant de la fusion accidentelle du cœur d'un réacteur nucléaire. **67, 68, 70.**

Crayon : tube de faible diamètre, fermé à ses deux extrémités, constituant du cœur d'un réacteur nucléaire, quand il contient une matière fissile, fertile ou absorbante. Lorsqu'il contient de la matière fissile, le crayon est un **élément combustible***. **7-13, 16-19, 21-23, 28, 29, 35, 47-49, 51, 54, 55, 57-59, 63, 64, 67-69, 81-83, 87-89.**

Criticité : configuration caractéristique d'une masse de matière qui contient des éléments fissiles et, éventuellement, d'autres éléments, dans une composition, des proportions et une géométrie telles qu'une réaction de fission en chaîne peut y être auto-entretenu. **67, 71, 99.**

Critique : se dit d'un milieu où s'entretient une réaction de **fission*** en chaîne au cours de laquelle apparaissent autant de neutrons qu'il en disparaît. **42, 60, 136.**

Cycle du combustible : ensemble des étapes suivies par le combustible de l'extraction du minerai jusqu'au stockage des déchets. **7, 8, 74.**

Cycle d'irradiation : période de fonctionnement d'un réacteur entre deux rechargements successifs. **9, 17, 71-74.**

Décroissance radioactive : transformation d'un radionucléide en un nucléide différent par l'émission spontanée de rayonnements alpha, bêta ou gamma ou par capture électronique. Le produit final est un noyau d'énergie moindre et plus stable. Chaque processus

de décroissance radioactive a une période bien définie. **82, 83, 112.**

Défaut ponctuel : défaut localisé en un point d'un réseau cristallin, résultant soit d'un atome manquant (**lacune***), soit d'un atome supplémentaire situé entre les positions atomiques normales (**interstitiel***), soit d'un atome étranger substitué à un des atomes du réseau. Une paire de **Frenkel*** est produite par le déplacement d'un atome hors de son site dans le cristal, créant ainsi une lacune et un interstitiel. **31-33, 96.**

Dislocation : défaut affectant l'arrangement des atomes dans un solide cristallin. On distingue les dislocations associées à l'insertion d'un demi-plan d'atomes dans le cristal (dislocations coin) et celles associées à la coupure du cristal selon un demi-plan et déplacement des atomes du cristal parallèlement au bord de ce demi-plan (dislocations vis). **14, 31, 33, 36, 37, 95, 96, 135.**

dpa : nombre de déplacements par atome induits dans un matériau sous irradiation. Cette unité est bien adaptée pour quantifier les irradiations dans les métaux. **92, 95-97, 124, 136, 137.**

Ductilité : capacité d'un matériau à subir des déformations plastiques. **36, 60, 64, 68, 124, 125, 129.**

Élément combustible : voir **Assemblage***.

Enrichissement : processus qui, dans le cas de l'uranium, permet d'augmenter par divers procédés (diffusion gazeuse, ultracentrifugation, excitation sélective par laser) la concentration de l'isotope 235 par rapport à l'isotope 238 prédominant dans l'uranium naturel. **13, 71, 72, 74, 75, 77, 87-89, 111, 112, 124, 127, 128, 130, 133, 134.**

Entreposage (de déchets nucléaires) : installation dans laquelle les déchets sont placés, avec le projet de les reprendre ultérieurement (voir aussi **stockage***). **13, 36, 51, 71, 74, 77, 79, 81-83, 85, 92.**

Épithermiques (neutrons) : neutrons situés dans la gamme d'énergie de 10 eV à 20 keV environ et ayant ainsi une vitesse supérieure à celle des neutrons thermiques. **17, 19, 99.**

Eutectique : la température de fusion d'un mélange binaire dépend des proportions du mélange. Elle peut être notablement inférieure à la température des deux composants purs et atteint sa valeur minimale pour une composition dite « eutectique ». **7.**

Fertile : se dit d'une matière dont les noyaux, lorsqu'ils absorbent des neutrons, donnent des noyaux **fissiles***. C'est le cas de l'uranium 238 qui conduit au plutonium 239. Une matière est dite « stérile », dans le cas contraire. **71, 91, 101, 103, 104, 123.**

FIMA (*Fission per Initial Metallic Atom*) : le FIMA est une unité de taux de combustion d'un combustible nucléaire, exprimée en termes de proportion de fissions réalisées dans une population d'atomes de métal lourd. La correspondance avec le taux de combustion massique (MWj/tM) plutôt utilisé par les exploitants de réacteurs est : 1 % FIMA \approx 9 500 MWj/tM. Ce taux de combustion peut être comparé au taux de combustion nominal des assemblages REP UO₂ et MOX qui est actuellement de 52 000 MWj/tM (5,5 % FIMA). **92, 93, 112, 113, 116, 117, 120, 123.**

Fissile (noyau) : noyau pouvant subir la **fission*** par absorption de **neutrons***. En toute rigueur, ce n'est pas le noyau appelé « fissile » qui subit la fission, mais le noyau composé formé par suite de la capture d'un neutron. **71, 75, 91, 124.**

Fission : scission d'un noyau atomique en deux fragments. Cette transformation, qui est un cas particulier de désintégration radioactive de certains noyaux lourds, dégage une quantité importante d'énergie, et est accompagnée par l'émission de neutrons et de rayonnement gamma. La fission des noyaux lourds dits « fissiles » peut être induite par la collision avec un neutron. Voir l'ensemble de la monographie.

Flambage : effondrement d'une structure mécanique sous l'effet d'un chargement qui la rend instable. **55, 56.**

Fluage : déformation progressive d'un solide sous l'effet d'un champ de contraintes appliqué pendant des durées longues. Le fluage peut être activé par la chaleur (on parle alors de « fluage thermique ») et/ou par l'irradiation. **18, 20, 36, 37, 41, 43, 44, 47, 48, 52, 54, 60, 61, 83, 96, 109, 116, 125, 135.**

Fluence : la fluence est une unité de dose utilisée pour quantifier l'irradiation des matériaux. C'est le nombre de particules (par exemple, des neutrons) arrivant par unité de surface durant l'irradiation. **73, 95, 109, 112, 115, 116.**

Flux de neutrons : nombre de neutrons qui traversent une unité de surface par unité de temps. **35, 43, 73, 91, 99, 124, 137, 139.**

Fretting : usure d'un matériau sous l'action conjuguée du frottement et de la corrosion (le terme est employé plus particulièrement dans le cas de l'usure de la gaine d'un crayon combustible au point de contact avec la grille de maintien dans l'assemblage). **21, 51, 54, 55, 57.**

Frittage : opération consistant à souder les grains d'une poudre compactée de métal ou de céramique, en chauffant cette poudre au-dessous de la température de fusion du matériau. **13, 15, 47, 49, 104, 120.**

Fusion du cœur : accident nucléaire au cours duquel le combustible nucléaire est porté à assez haute température pour que le combustible nucléaire fonde et se rassemble sous forme d'un magma corrosif (le **corium***) au fond de la cuve du réacteur. **70.**

GAIA : installation du CEA Cadarache pour la fabrication de combustible à particules. **107, 108.**

Gaine : enveloppe entourant la matière combustible, destinée à assurer son isolation et sa tenue mécanique dans le cœur du réacteur. **9-11, 16-18, 35-47, 59-68, 93, 95-97, 100, 109, 124, 125, 128, 130, 131, 133, 135, 137.**

Gonflement : phénomène affectant les matériaux sous irradiation. **13, 18, 20, 25, 29, 32, 41-44, 68, 93, 95-97, 100, 113, 116, 119, 120, 124, 125, 131, 137.**

Grappe de commande ou de contrôle : voir **Barre de commande***. **11, 51-53, 63.**

HEU (*Highly Enriched Uranium*) : uranium enrichi à plus de 20 % en uranium 235. **119, 127, 128.**

Interstitiel : (voir **Défaut ponctuel***).

Inventaire en radionucléides : quantités de produits de fission et d'actinides contenus dans un combustible irradié exprimées généralement en Bq/gMLi ou en g/tMLi. Ces quantités et les spectres isotopiques associés dépendent de plusieurs paramètres tels que la nature du combustible et les conditions d'irradiation (taux de combustion...). Les inventaires moyens sont calculés à une date donnée à l'aide de code de calculs, alors que la répartition des inventaires, qui dépend des conditions d'irradiation et de la thermique du combustible, nécessite la mise en œuvre de moyens de caractérisation (microsonde électronique...). **59, 68, 78-80, 82, 84.**

Isotopes : formes d'un même élément dont les noyaux possèdent un nombre de protons identique et un nombre de neutrons différent. L'uranium 238 et l'uranium 235 sont des isotopes de l'uranium. **7, 21, 23, 59, 72, 73, 77, 78, 103.**

IPG : interaction pastille-gaine. **30, 41-43, 45, 47, 48.**

JEPP : unité de temps de fonctionnement d'un réacteur, exprimée en « Jours Équivalents Pleine Puissance ». **71, 72, 130, 133.**

Lacune : voir **Défaut ponctuel***.

LEU (*Low Enriched Uranium*) : uranium enrichi à moins de 20 % en uranium 235. **111, 112, 119, 120, 127-129, 134.**

MARGARET : modèle décrivant le comportement des gaz de fission dans les pastilles combustibles. **29, 30.**

Martensitique (structure) : une structure cristalline cubique centrée rencontrée dans certains alliages métalliques, en particulier certains aciers. **95-97.**

MÉTÉOR : modèle décrivant le comportement d'un crayon combustible sous irradiation. **29, 30, 43.**

Microstructure : appliqué au combustible nucléaire ou à un matériau métallique, ce terme désigne la forme, la taille et l'agencement d'un matériau polycristallin. **18-21, 23, 25, 26, 28, 36-38, 46-49, 83, 91, 95, 96, 100, 101, 113, 120, 121, 132, 136, 137.**

Modérateur : matériau formé de noyaux légers qui ralentissent les neutrons* par diffusion élastique. Utilisé dans les réacteurs nucléaires à neutrons lents afin d'augmenter la probabilité d'interaction des neutrons avec les noyaux lourds du combustible, le modérateur doit être peu capturant afin de ne pas « gaspiller » les neutrons et être suffisamment dense pour assurer un ralentissement efficace. **72, 87, 88.**

MOX (*Mixed Oxides*) : mélange d'oxydes d'uranium (naturel ou appauvri) et de plutonium. Voir l'ensemble de la monographie et plus particulièrement : **14, 25, 48, 74, 78-80.**

Neutronique : étude du cheminement des neutrons* dans les milieux fissiles* et non fissiles et des réactions qu'ils induisent dans la matière, en particulier dans les réacteurs nucléaires sous l'angle de leur multiplication, de l'établissement et du contrôle de la réaction en chaîne*. **7, 30, 35-38, 42, 51, 71-73, 75, 78, 87-89, 91, 95, 99, 100, 103, 116, 119, 123, 124, 127, 132, 136-138.**

Neutrons retardés : neutrons* émis par les fragments de fission* avec un retard de quelques secondes en moyenne après la fission. Bien que représentant moins de 1 % des neutrons émis, ce sont eux qui, par ce décalage dans le temps, permettent *in fine* le pilotage des réacteurs. Voir aussi **Bêta effectif***. **72, 100, 101, 107, 123-125.**

Nitride : **7, 8, 34, 92, 93.**

ODS (*Oxide Dispersion Strengthened*) : alliage renforcé par des nanoparticules d'oxyde. **96, 97.**

ORPHÉE : réacteur de recherche. **128.**

OSIRIS : réacteur de recherche. **42, 45, 49, 52, 68, 128, 130, 133-135.**

Paire de Frenkel : voir **Défaut ponctuel***.

Pastille : petit cylindre de céramique à base d'uranium, de plutonium ou d'autres actinides servant de combustible nucléaire. Voir l'ensemble de la monographie et plus particulièrement : **10, 13-16, 18-20, 41-46, 100.**

PHÉBUS : réacteur de recherche pour l'étude des accidents. **69.**

PHÉNIX : prototype de réacteur à neutrons rapides* refroidi au sodium. **91-93, 95-97, 139.**

PLÉIADES : plate-forme logicielle dédiée au combustible. **30, 43, 46, 116, 126.**

Plenum : dans le crayon combustible, le plenum est un volume libre à l'intérieur du crayon, non occupé par la matière combustible. Ce volume sert à confiner les gaz de fission relâchés par le combustible et à éviter que ce relâchement ne conduise à augmenter par trop la pression dans le crayon. **10, 47, 85, 100.**

Plutonium : élément formé par capture de neutrons par l'uranium dans le cœur des réacteurs nucléaires. Les isotopes* impairs du plutonium sont **fissiles***, ce qui fait du plutonium une matière nucléaire valorisable, par exemple sous forme de combustible **MOX***. Voir l'ensemble de la monographie et plus particulièrement : **9, 14, 25, 47, 71-80.**

Pointe de fission : les fragments de fission parcourent en moyenne 5 à 8 µm dans le combustible avant d'être stoppés. Le long de leur parcours, les atomes sont très fortement excités et des milliers de défauts ponctuels sont créés par choc élastique à la fin du parcours. Quelque 5 000 paires de Frenkel subsistent dans le cristal après chaque fission. C'est cette zone de matière désorganisée qu'on appelle « pointe de fission ». **17.**

Poisons (neutroniques) : éléments dotés d'un pouvoir élevé de capture des neutrons utilisés pour compenser, du moins en partie, l'excédent de **réactivité*** des milieux **fissiles***. Quatre éléments naturels sont particulièrement neutrophages : le bore* (grâce à son isotope B 10), le cadmium, le hafnium et le gadolinium (grâce à ses isotopes Gd 155 et Gd 157). Certains sont dits « consommables », car ils disparaissent progressivement au cours de la combustion en réacteur. Certains **produits de fission*** sont des poisons neutroniques. **22, 71, 72, 87, 88.**

Produits de fission : **nucléides*** produits soit directement par la fission* nucléaire, soit indirectement par la **désintégration*** des fragments de la fission. Voir l'ensemble de la monographie.

Pyrocarbone ou **carbone pyrolytique** : carbone amorphe produit par décomposition à haute température d'un hydrocarbure gazeux. Le pyrocarbone est utilisé comme couche d'enrobage dans la composition du combustible à particules. **103, 105, 106, 109, 110, 112, 115, 116, 119.**

Pyrophorique : se dit d'un matériau capable de s'enflammer spontanément à l'air. **13, 124.**

Radioactivité (radioactif) : propriété que possèdent certains éléments naturels ou artificiels d'émettre spontanément des particules α , β ou un rayonnement γ . Est plus généralement désignée sous ce terme l'émission de rayonnements accompagnant la **désintégration*** d'un élément instable ou la **fission***. **77, 84.**

Radiolyse : décomposition de matière par des rayonnements ionisants. **22, 38, 84, 136.**

Radiotoxicité potentielle (d'une certaine quantité de radionucléides, par exemple dans des déchets) : la radiotoxicité potentielle, définie comme étant le produit de l'**inventaire*** en radionucléides par le facteur de dose « ingestion » desdits radionucléides, est un indicateur du pouvoir de nuisance de cette quantité de radionucléides en situation accidentelle. **79, 80.**

Rapport de modération : dans un réacteur, rapport entre la quantité de modérateur (eau en ce qui concerne notamment les **REP***) et la quantité de combustible. Ce rapport règle l'énergie moyenne des neutrons. **103.**

Réacteur à eau bouillante (REB) : réacteur dans lequel l'ébullition de l'eau se fait directement dans le cœur. **12, 13, 16, 42, 71, 73, 87, 88.**

Réacteur à eau sous pression (REP) : réacteur dans lequel la chaleur est transférée du cœur à l'échangeur de chaleur par de l'eau maintenue sous une pression élevée dans le circuit primaire, afin d'éviter son ébullition. Voir l'ensemble de la monographie.

Réacteur à neutrons rapides (RNR) : réacteur sans **modérateur*** dans lequel la majorité des fissions sont produites par des neutrons présentant des énergies du même ordre de grandeur que celle qu'ils possèdent lors de leur production par fission. **8, 91, 93, 95-97, 99-101, 124, 136.**

Réacteur Jules Horowitz (RJH) : voir notamment chapitre « Un outil pour les études sur le combustible : le réacteur Jules Horowitz (RJH) ». **129, 134, 135.**

Réactivité : quantité sans dimension permettant d'évaluer les petites variations du **facteur de multiplication*** k autour de la valeur critique et définie par la formule $\rho = (k - 1)/k$. Sa valeur étant très petite, elle est généralement exprimée en cent millièmes, en prenant pour unité le **pcm** (pour cent mille). Dans un réacteur, la réactivité est nulle lorsqu'il est **critique**, positive s'il est **surcritique** et négative s'il est **sous-critique**. **9, 35, 58, 63-65, 71-73, 87, 88, 137.**

Relâchement labile : fraction de l'inventaire en radionucléides susceptible d'être relâchée instantanément lorsque l'eau arrivera au contact du combustible irradié. Il concerne essentiellement les produits de fission solubles en solution et ne dépend pas des propriétés de confinement des différentes couches du combustible irradié. Il dépend essentiellement de l'accessibilité de l'eau et des quantités de PF ségréguées ou sorbées à l'extérieur du combustible. **84.**

RIA : accident d'insertion de réactivité (*Reactivity Insertion Accident*). **63.**

RIM : zone restructurée sous l'effet de l'irradiation et du gradient thermique en périphérie de la **pastille*** combustible. **19, 27, 29, 43, 84.**

RNR-G : réacteur à neutrons rapides refroidi au gaz. **136.**

SCANAIR : code dont la caractéristique principale est de traiter les phénomènes intimement couplés que sont la thermique, la mécanique du crayon et le comportement en transitoire des gaz de fission, à partir d'un état initial du crayon issu d'un calcul d'irradiation. **64.**

Section efficace : mesure de la probabilité d'interaction d'une particule avec un noyau-cible, exprimée en barns ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$). Dans le cas du **neutron***, par exemple, elle définit sa probabilité d'interaction avec les noyaux de la matière. **17, 35, 77.**

SIMS (*Secondary ion mass spectroscopy*) : cette méthode d'analyse de la surface des matériaux consiste à bombarder l'échantillon avec un faisceau d'ions et à analyser les ions arrachés à la surface grâce à un spectromètre de masse. **27, 28, 30.**

Sorbé : voir **Sorption***.

Sorption : fixation faible et réversible d'un atome ou d'une molécule sur une surface solide. **21.**

Stockage (de déchets nucléaires) : installation dans laquelle les déchets sont placés, sans projet de reprise ultérieure. La reprise serait néanmoins possible dans le cas d'un stockage réversible (voir aussi **Entreposage***). **79, 81, 83-85, 101, 137.**

SUPERPHÉNIX : prototype de réacteur à neutrons rapides, refroidi au sodium. **91.**

Taux de combustion : au sens propre, il correspond au pourcentage d'atomes lourds (uranium et plutonium) ayant subi la **fission*** pendant une période donnée. Couramment utilisé pour évaluer la quantité d'énergie thermique par unité de masse de matière **fissile*** obtenue en réacteur entre le chargement et le déchargement du combustible, il s'exprime en mégawatts-jour par tonne (MW-j/t). Le **taux de combustion de rejet*** est le taux auquel l'assemblage combustible, après plusieurs cycles d'irradiation, doit être définitivement déchargé. Voir l'ensemble de la monographie.

Taux de relâchement : appliqué au combustible, ce terme désigne le ratio entre la quantité de produits de fission relâchés hors de la céramique combustible et la quantité totale produite par les réactions de fission. **19, 22, 23, 92, 112, 138.**

Ténacité : quantité caractéristique d'un matériau, exprimée en MPa.m^{1/2}, mesurant sa résistance à la propagation de fissures. **124.**

TOUTATIS : application combustible 3D développée à partir du code élément fini CAST3M du CEA. **43.**

Transmutation : transformation par une réaction nucléaire induite par des **neutrons*** (capture, **fission***) d'un **isotope*** en un autre et plus particulièrement d'un isotope **radioactif*** à vie longue en un isotope à vie courte ou en un isotope stable. **7, 8, 79, 80, 99-101.**

TRIPOLI : code de calcul de type Monte-Carlo utilisé pour modéliser le transport des neutrons. **73.**

TRISO : type de combustible à particules formé d'un noyau de matière fissile ou fertile enrobé de quatre couches successives : pyrocarbone poreux, pyrocarbone dense, SiC, pyrocarbone dense. **103, 104, 107, 111-113, 119-122.**

UOX : combustible standard des **réacteurs à eau légère** constitué d'oxyde d'uranium **enrichi** en uranium 235. **74, 75, 77-79, 82, 99.**

Uranium : élément naturel le plus lourd, de numéro atomique 92.

VERCORS : programme analytique réalisé au CEA et qui étudie le comportement du combustible et le relâchement des PF. **68-70.**

Zircaloy : alliage de zirconium et d'un ou plusieurs autres métaux (étain, fer, chrome, nickel), particulièrement résistant du point de vue mécanique et chimique. Il est utilisé pour la conception des gaines de combustible. **8, 10, 16, 36-39, 42, 57, 67, 69, 87-89, 128.**

Table des matières

Préface	5
Introduction	
Le combustible : le « consommable » des réacteurs	7
Le combustible des réacteurs à eau	
À quoi ressemble le combustible des réacteurs à eau ?	9
Qu'attend-on d'un combustible nucléaire ?	9
La céramique combustible	9
Crayons combustibles	10
Assemblages combustibles REP	10
Assemblages combustibles REB	12
Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau	13
Fabrication des pastilles d'UO ₂	13
Fabrication des pastilles de MOX (oxyde mixte uranium – plutonium)	14
Fabrication des gaines	16
Le comportement des combustibles UO ₂ et MOX en réacteur	17
Conditions d'irradiation en fonctionnement nominal	17
Production et évacuation de la chaleur	17
Phénomènes intervenant en début d'irradiation	18
Comportement des gaz de fission	18
Évolution de la microstructure	19
Comportement du combustible des réacteurs à eau en situation de perte d'étanchéité	21
La gaine, première barrière de confinement	21
Les causes de défaillance	21
Les conséquences d'une défaillance	22
La morphologie microscopique de la céramique combustible et son évolution sous irradiation. Migration et localisation des produits de fission dans les matrices UOX et MOX	25
La céramique sous irradiation	25
Bulles et précipités	26
La modélisation du comportement des combustibles	29
Modélisation des défauts et des produits de fission dans la céramique UO ₂ par calculs <i>ab initio</i>	31
Les calculs <i>ab initio</i>	31
Défauts ponctuels dans le dioxyde d'uranium	32
Produits de fission dans le dioxyde d'uranium	33
L'indispensable couplage modélisation / expérimentation	33
Les matériaux de gaine et d'assemblage	35
Pourquoi une gaine ?	35
Les alliages de zirconium	36
Des gaines qui doivent avoir une bonne résistance mécanique	36
Le comportement mécanique des alliages de Zr irradiés	36
Des gaines qui doivent résister à la corrosion	37
L'interaction pastille-gaine	41
Phénoménologie de l'IPG	41
La simulation expérimentale de l'IPG et ses enseignements.	
Nécessité d'une base expérimentale	42
La simulation numérique de l'IPG	43

Vers la suppression des contraintes d'exploitation liées à l'IPG	45
Les céramiques UO₂ et MOX avancées	47
Le combustible UO ₂ dopé à l'oxyde de chrome	47
Les nouvelles microstructures de MOX	48
Le comportement mécanique de l'assemblage combustible	51
Le comportement mécanique de l'assemblage en fonctionnement normal	52
Le comportement mécanique de l'assemblage en situation accidentelle	55
Conclusion	57
Le combustible, lors d'un accident par perte de réfrigérant primaire (APRP)	59
Introduction aux transitoires accidentels de type APRP –	
Description synthétique des aspects thermo-hydraulique et combustible	59
Incidence des transitoires APRP sur le comportement thermo-métallurgique-mécanique du gainage en alliage base zirconium	60
Le combustible, lors d'un accident de réactivité	63
Les critères de sûreté	63
Le combustible, lors d'un accident grave	67
Le programme analytique VERCORS	68
Les essais globaux PHÉBUS-PF	69
La maîtrise des accidents graves du réacteur EPR	70
La gestion du combustible dans les cœurs de réacteurs	71
Relations entre durée de cycle, irradiation maximale et fractionnement	71
Enrichissement et poisons consommables	71
Influence de la nature du combustible et de son évolution	
sur les paramètres importants de la physique et de la gestion des cœurs	72
Perspectives d'évolution dans la gestion des cœurs	73
Des bilans de matière pour le cycle du combustible	77
Évolution des matières dans le cœur	77
Puissance résiduelle et radiotoxicité potentielle	79
Gestion du plutonium	80
Le comportement à long terme du combustible utilisé	81
Nature du combustible nucléaire utilisé	81
Évolution attendue du combustible en entreposage à sec	82
Évolution attendue du combustible en stockage géologique profond	83
Combustible des réacteurs à eau bouillante	87
Similitudes et différences avec le combustible REP	87
Zonage axial et radial	88
Taille du crayon et du boîtier	88
Empoisonnement et contrôle de réactivité	88
Particularités de la gaine	88
Tendance en évolution du combustible	89
Le combustible pour réacteurs rapides à métaux liquides	
Le combustible pour réacteurs à neutrons rapides à métaux liquides	91
Dégâts d'irradiation par les neutrons rapides dans les matériaux de structure	95
Dégâts induits dans les métaux par les neutrons rapides	95
Quels matériaux utiliser ?	95
Combustibles et cibles pour la transmutation en RNR	99
Les RNR : des réacteurs capables de transmuter efficacement les actinides	99
Recyclage : homogène ou hétérogène ?	99
Le combustible pour réacteurs à gaz	
Le combustible à particules	103
De l'idée initiale au concept de particule TRISO avancée	103
Les procédés d'élaboration des noyaux	104
Le revêtement des particules par dépôt en phase vapeur	105
La réalisation des éléments combustibles : le compactage des particules	105
La caractérisation des particules et des éléments combustibles	106

De la particule HTR aux combustibles VHTR et GFR : l'installation GAIA du CEA/Cadarache	107
Comportement sous irradiation des combustibles à particules	109
Le combustible à particules : divers modes de défaillance pour un objet très résistant	109
L'effet amibe	110
Comportement et diffusion des produits de fission dans les combustibles à particules	111
Modélisation mécanique du combustible à particules	115
Le combustible pour réacteurs à très haute température (RTHT)	119
Le combustible pour réacteurs rapides à caloporteur gaz (RCG)	123
Cahier des charges du combustible RCG	123
Matériau fissile pour les RCG	123
Matériaux pour la première barrière de confinement	124
Concepts d'éléments combustibles RCG	124
Le combustible pour réacteurs de recherche	
Combustibles pour réacteurs de recherche	127
Un retour d'expérience considérable	127
Conversion des réacteurs au combustible U_3Si_2 faiblement enrichi (≤ 20 % en U 235)	127
Conversion de tous les réacteurs : besoins de R&D pour les réacteurs à performances élevées	128
Un combustible « avancé » pour les réacteurs de recherche : l'UMo	129
Le combustible pour le démarrage du réacteur Jules Horowitz (RJH) restera l' U_3Si_2/Al	134
Un outil pour les études futures sur le combustible : le réacteur Jules Horowitz	
Un outil pour les études sur le combustible : le réacteur Jules Horowitz (RJH)	135
Les expériences d'irradiation « combustibles » dans le RJH	135
Le RJH, outil flexible	139
Glossaire-index	143

Ont collaboré à cet ouvrage :

Yannick Guérin (Responsable de thème)
Jean-Luc Guillet (Responsable de thème)
Alain Ballagny
Bernard Bonin
Jean-Christophe Brachet
Marc Delpech
Sylvie Dubois
Gérard Ducros
Cécile Ferry
Michel Freyss
Didier Gilbon
Jean-Paul Grouiller
Daniel Iracane
Sylvie Lansiard
Patrick Lemoine
Richard Lenain
Philippe Marsault
Bruno Michel
Jean Noiro
Daniel Parrat
Michel Pelletier
Christophe Perrais
Mayeul Phelip
Sylvie Pillon
Christophe Poinssot
Joëlle Vallory
Carole Valot

... et, bien sûr, l'ensemble des membres du Comité éditorial
des monographies DEN :

Bernard Bonin (Rédacteur en chef), Alain Vallée (Centre CEA
de Saclay), Martine Dozol (Centre CEA de Cadarache),
Mickaël Lecomte (Centre CEA de Valhro),
Bernard Bouquin (Direction de la Communication), Michel Beauvy,
Georges Berthoud, Mireille Defranceschi, Gérard Ducros,
Yannick Guérin, Yves Limoge, Charles Madic, Gérard Santarini,
Jean-Marie Seiler, Pierre Sollogoub, Étienne Vernaz.



Achevé d'imprimer

