

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

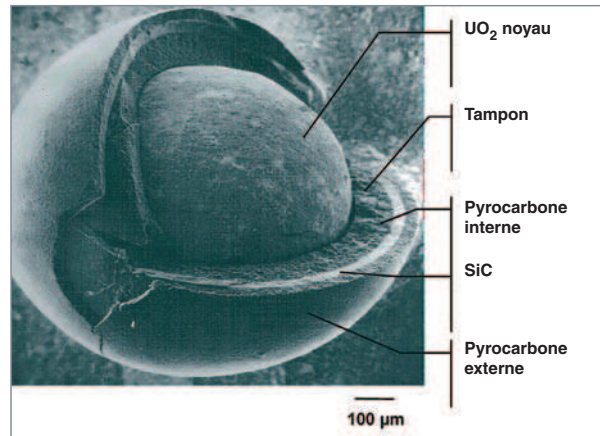


Fig. 104. Fractographie d'une particule UO_2 -TRISO-SiC.

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.

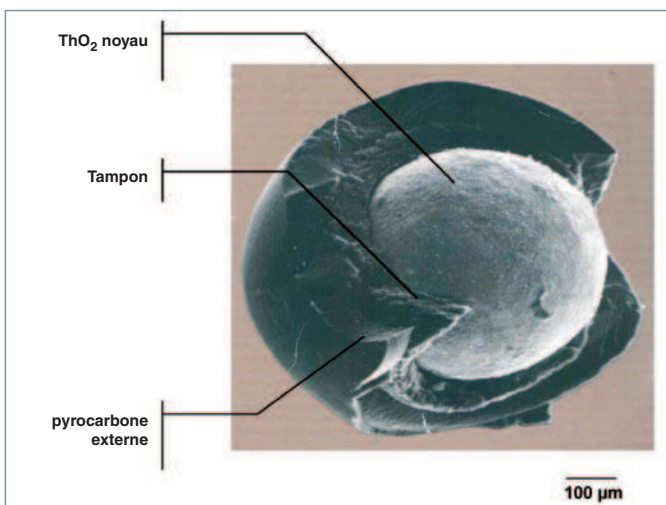


Fig. 103. Fractographie d'une particule ThO_2 BISO.

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,

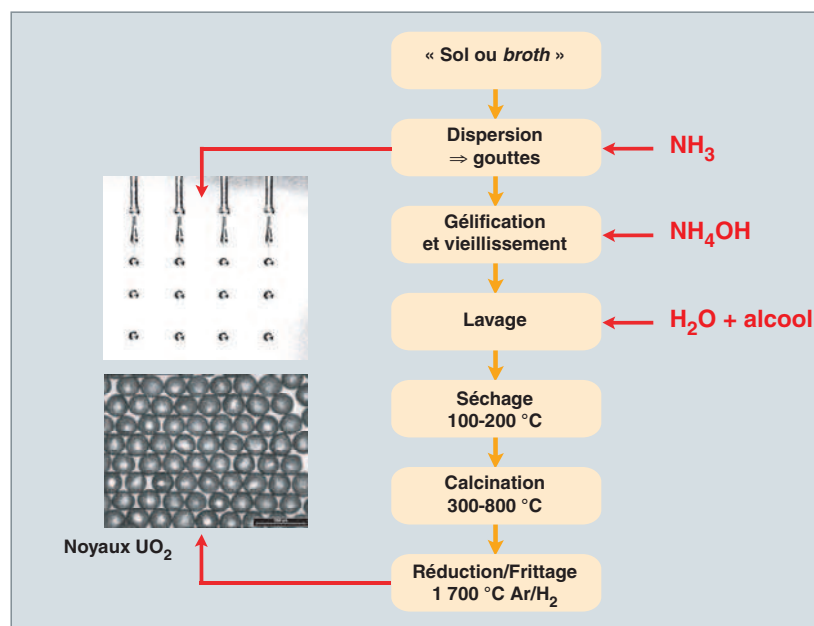


Fig. 105. Schéma de principe du procédé Sol-Gel GSP.

utilisé à l'ORNL aux États-Unis pour l'élaboration de noyaux UCO. Les avantages et inconvénients réciproques de ces deux procédés ont longuement 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 1 900 $^{\circ}\text{C}$), 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 1 200 à 1 400 $^{\circ}\text{C}$ 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 1 600 $^{\circ}\text{C}$ environ et une vitesse de dépôt $\leq 1 \mu\text{m}/\text{min}$.

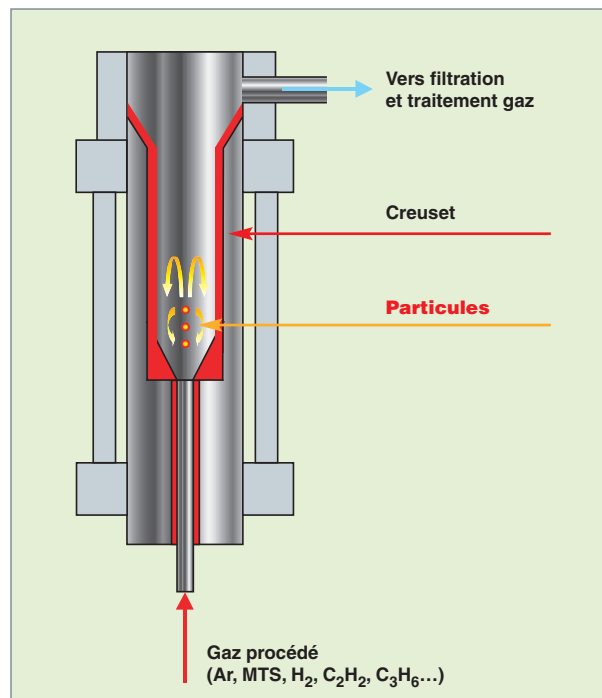


Fig. 106. Schéma de principe du four CVD.

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 combustibles 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

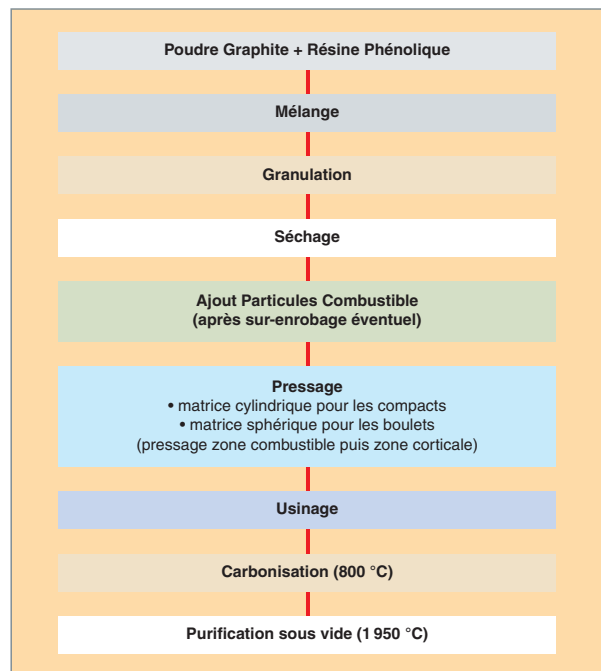


Fig. 107. Schéma de principe du compactage d'après [6].

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 défaillantes, avec recherche d'une méthode alternative non destructive et plus facilement automatisable.

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.

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 défaillantes.

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 transposition 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.

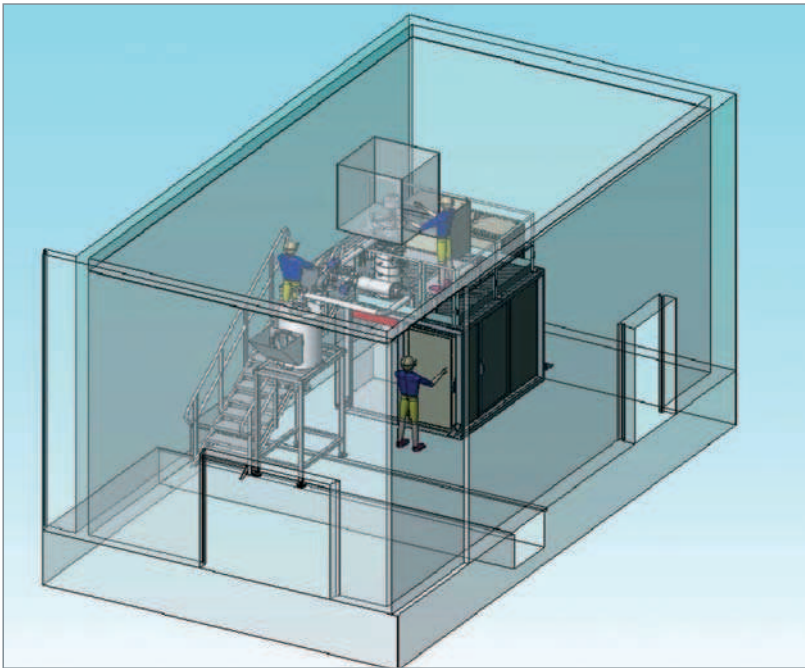


Fig. 109. Ensemble Four CVD Installation GAIA.

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. GUILLERMIER 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. GUILLERMIER 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 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

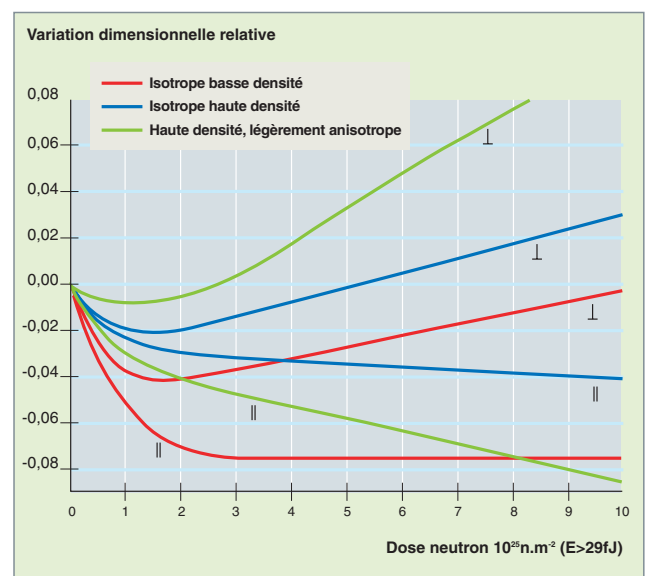


Fig. 110. Variations dimensionnelles de différents pyrocarbures dans les sens parallèle et perpendiculaire au plan de dépôt.

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 1 600 °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).

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).

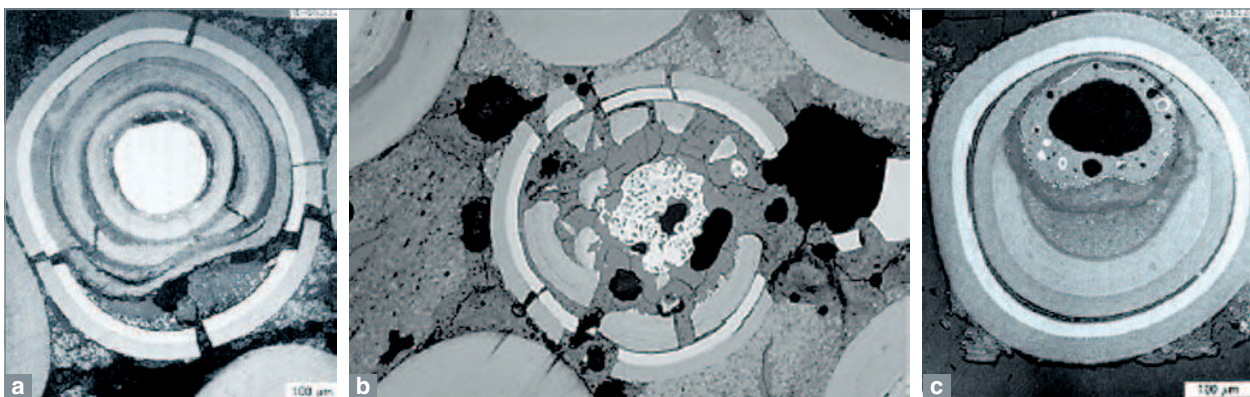


Fig. 111. Différents modes de ruine des particules. a) : Accumulation de PF ; b) : Surpression ; c) : Effet amibe L'effet amibe correspond au déplacement du noyau dans le buffer dû à un transport des atomes de carbone du buffer du côté chaud vers le côté froid à

l'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.

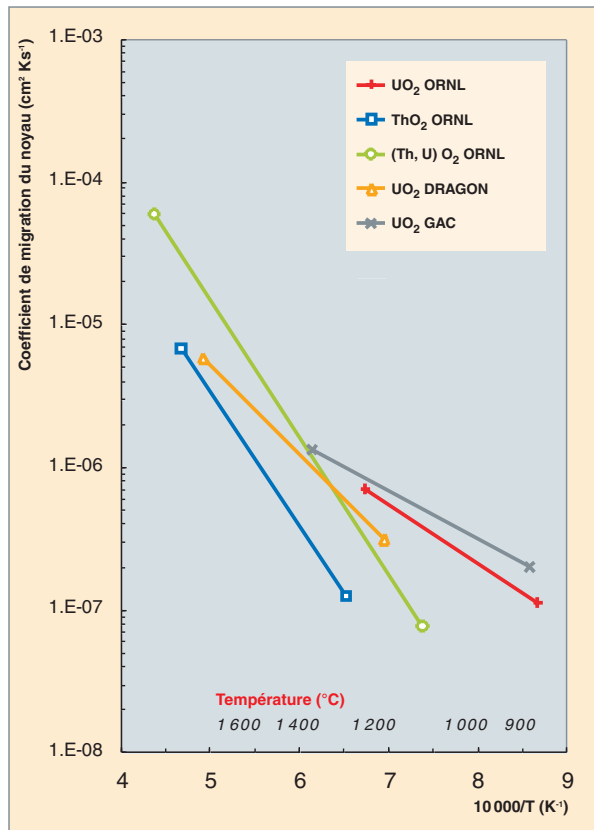


Fig. 112. Coefficient de migration du noyau, en fonction de la température.

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' UO_2 , 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 UO_2 , vient s'ajouter la présence des oxydes de carbone (CO/CO_2) 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 rédhitoire 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].

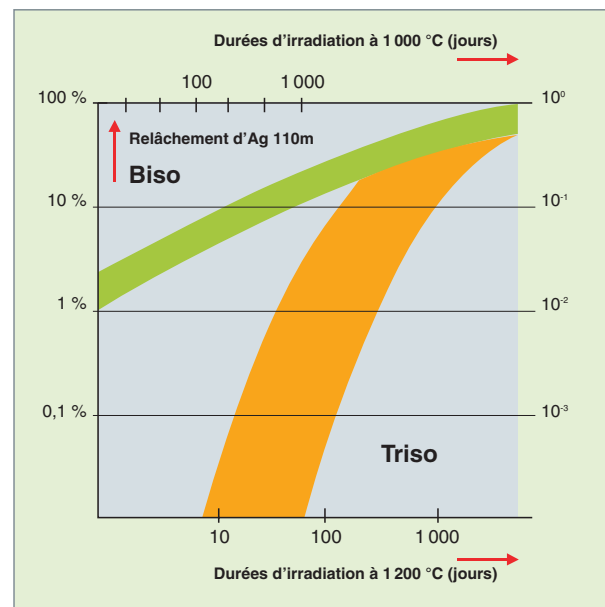


Fig. 113. Synthèse des mesures de relâchement d'Ag 110m issues d'irradiations de particules à noyau UO_2 à faible enrichissement en U 235 de types BISO et TRISO du réacteur expérimental DRAGON.

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 LEU⁹ 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 10²⁵ 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 5.10⁻⁶. 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 program¹¹) 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-

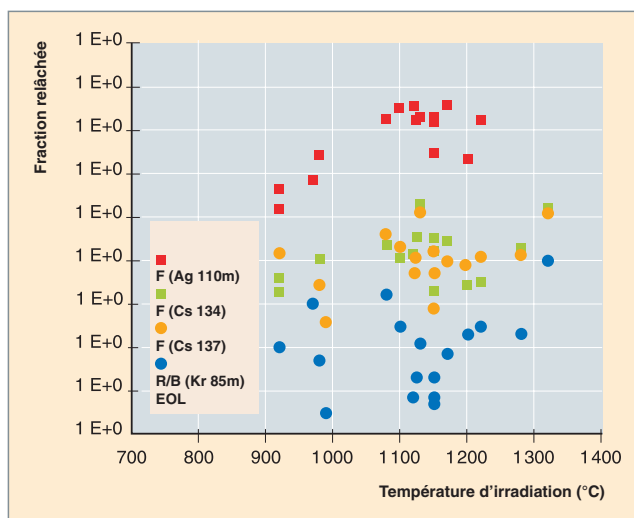


Fig. 114. Taux de relâchement de différents types de produits de fission : gazeux (krypton), volatil (Césium) et métallique (argent) en fonction de la température d'irradiation pour des particules UO₂ à faible enrichissement en U 235 TRISO dans des boulets allemands.

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/CO₂).

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 (UC₂) 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'UO₂.

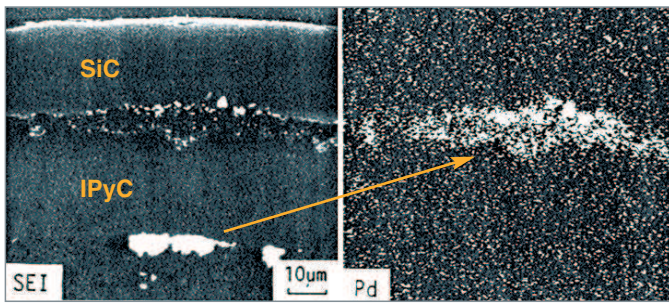


Fig. 115. Corrosion interne de la particule combustible par le palladium.

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. BUONJURNO, 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.

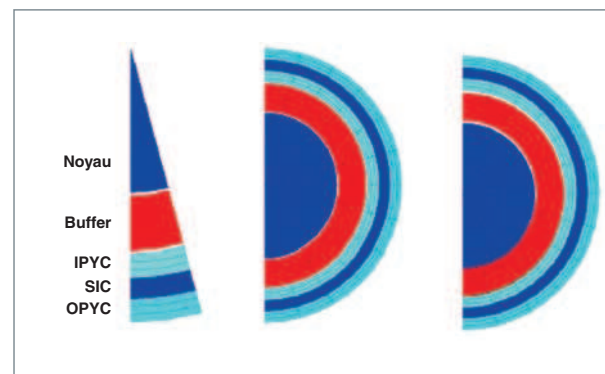


Fig. 116. Exemples de modèles d'éléments finis pour la modélisation mécanique du combustible à particules avec l'application ATLAS développée au CEA (modèle 1D, 2D centré, 2D excentré).

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 thermochimique, 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 structurelle 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 structurelle 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.

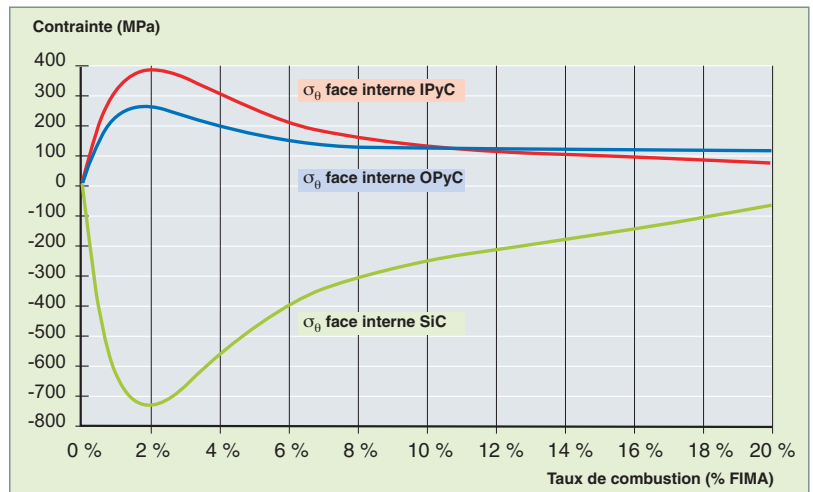


Fig. 117. Exemple de calcul d'évolution de contraintes tangentielles dans les couches IPyC, SiC et OPyC.

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.

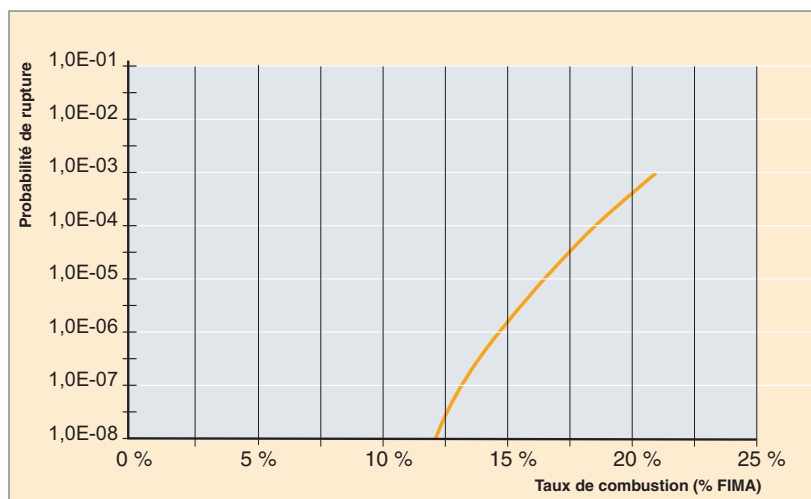


Fig. 118. Exemple de calcul de la probabilité de rupture, en fonction du taux de combustion du combustible à particules.

► 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 VHTR 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 incidentel 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 pyrocarbures 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 d'« 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 ($> 2\ 000\ ^\circ\text{C}$), 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.

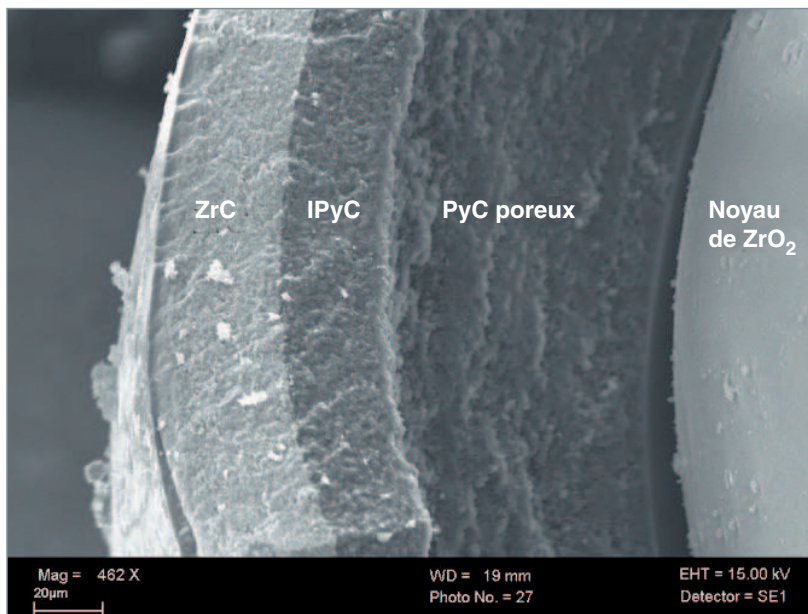


Fig. 119. Fractographie vue au microscope à balayage d'une particule, révélant sa morphologie après l'étape de dépôt de la couche ZrC (DRT/LITEN).

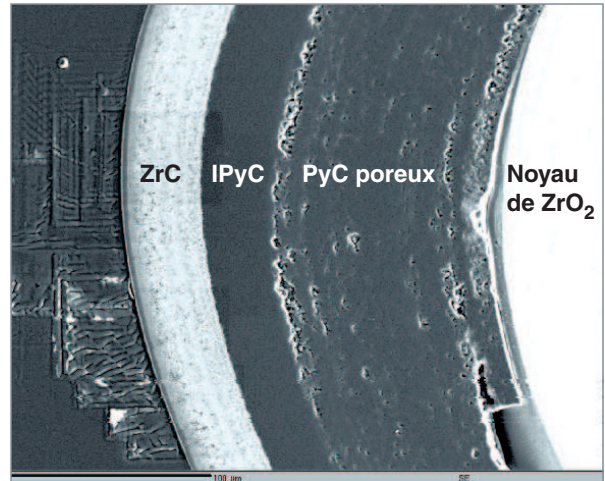


Fig. 120. Micrographie optique sur coupe polie montrant la différence de microstructure, corrélée avec des gradients de composition chimiques, dans l'épaisseur de la couche de ZrC (DRT/LITEN).

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 $8\ \mu\text{m}$ 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 $2\ 400\ ^\circ\text{C}$ [3].

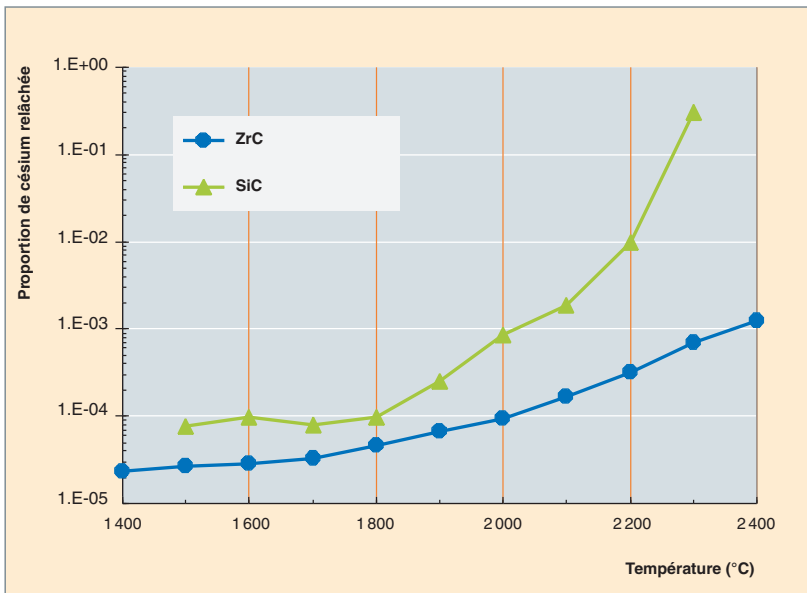


Fig. 121. Relâchement comparé de l'isotope Cs 137 de particules revêtues de couches SiC et ZrC, lors d'un chauffage post-irradiation d'une durée de deux heures.

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-fabriqués 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 $2 \cdot 10^{27}$ 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 ($\times 1,23$ et $\times 1,30$ 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.

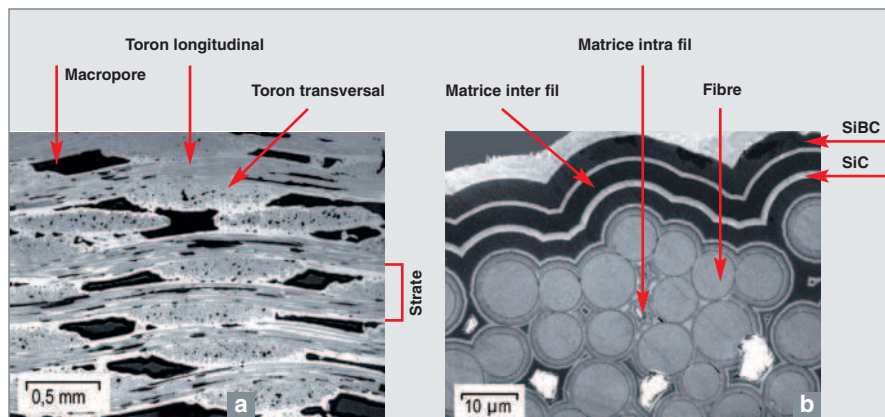


Fig. 122. Images au MEB d'un composite céramique SiC/SiC fibré (LCTS Bordeaux).

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

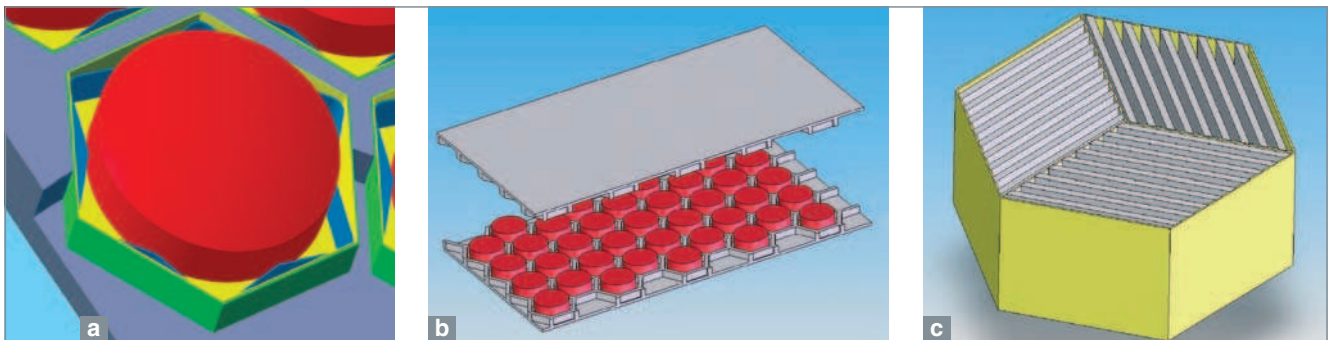


Fig. 123. Schémas d'un comprimé de combustible dans son alvéole (a), d'une plaque macro-structurée (b), et d'un assemblage de plaques dans une structure hexagonale (c).

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