

# 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/cm<sup>3</sup> 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 **gaines\*** 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 UO<sub>2</sub> (ou UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub> 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<sub>2+x</sub> ou (U<sub>1-y</sub>Pu<sub>y</sub>)O<sub>2+x</sub> 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 stœchiométrique, 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<sub>2+x</sub> ou (U<sub>1-y</sub>Pu<sub>y</sub>)O<sub>2+x</sub> 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<sub>1-y</sub>Pu<sub>y</sub>)<sub>3</sub>O<sub>8</sub> et (U<sub>1-y</sub>Pu<sub>y</sub>)<sub>4</sub>O<sub>9</sub>. 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.

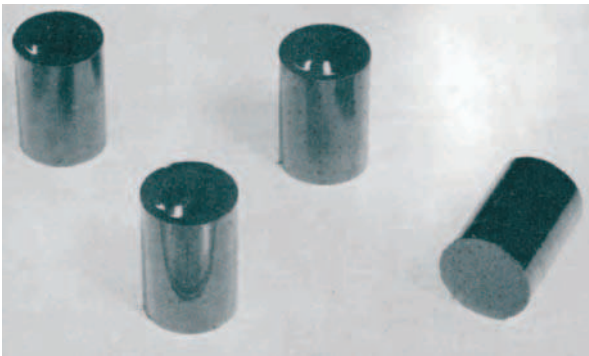


Fig. 1. Pastilles combustibles.

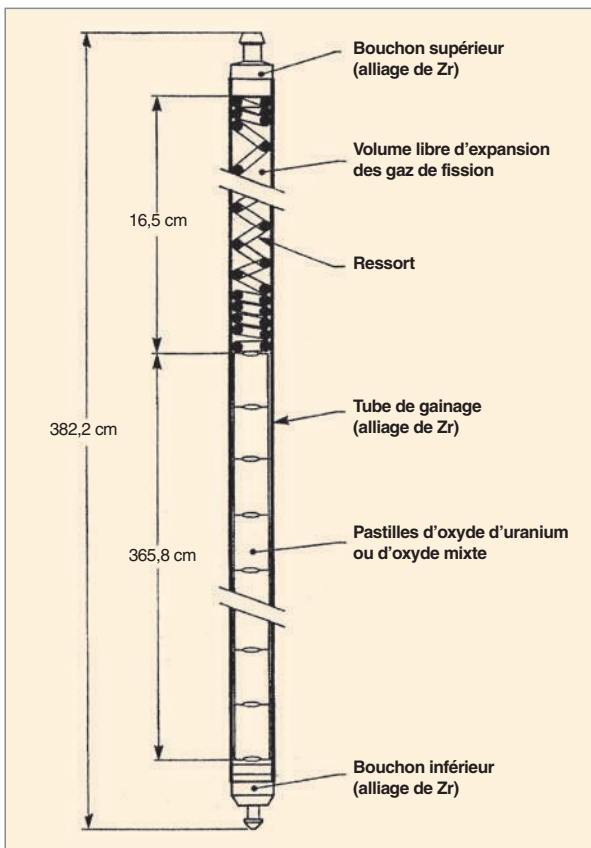


Fig. 2. Schéma d'un crayon combustible (avec les dimensions d'un crayon REP 900 MW).

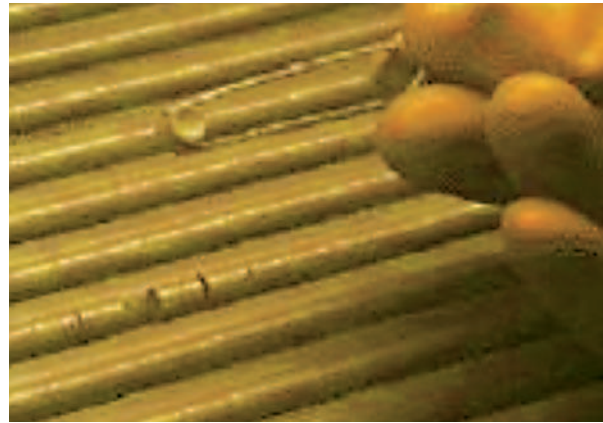


Fig. 3. Pastilles de combustible MOX, prêtes à être « engainées ».

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.

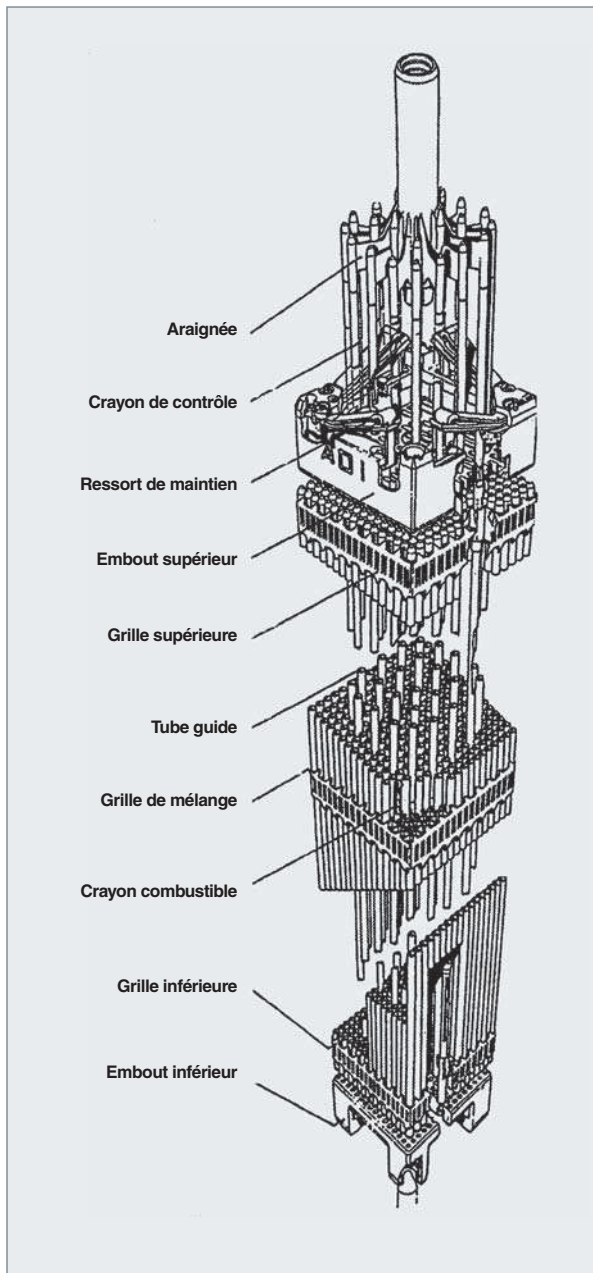


Fig. 4. Schéma d'un assemblage combustible REP 17 x 17 et d'une grappe de contrôle.

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.

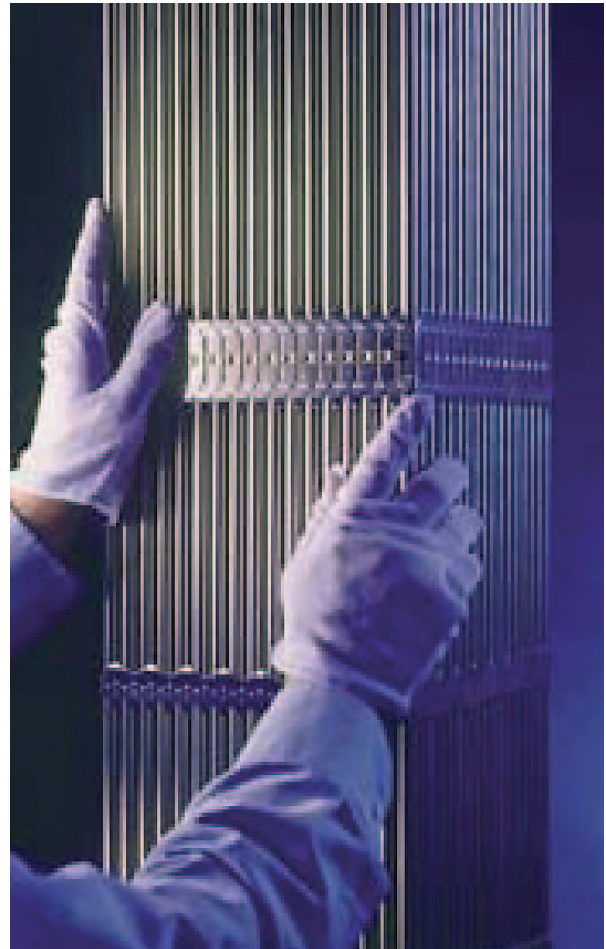


Fig. 5. Photo d'une portion d'assemblage REP, lors de l'étape de contrôle.

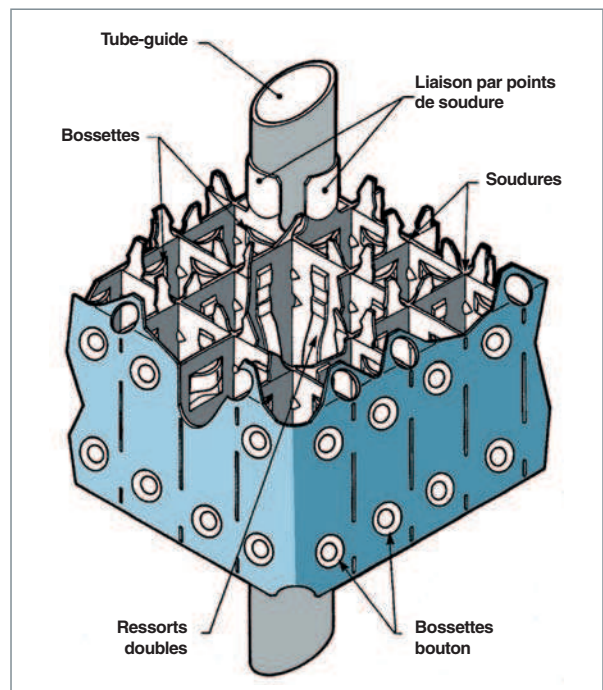


Fig. 6. Schéma d'une grille d'assemblage AFA2G (AREVA).

## 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*

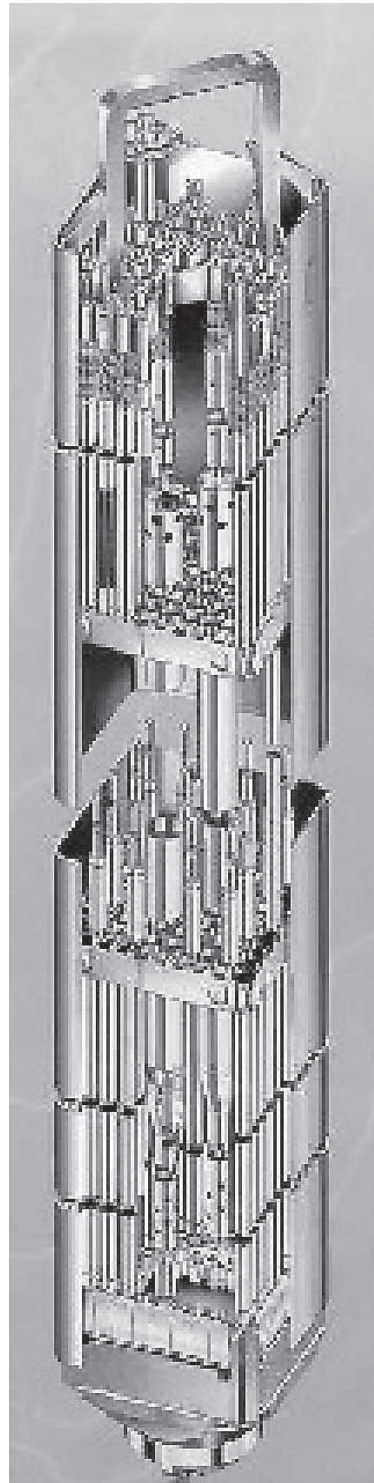


Fig. 7. Schéma d'un assemblage combustible REB.

# 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  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2$  (MOX) permettant de recycler le plutonium.

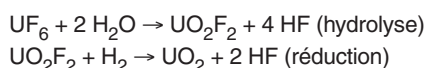
La fabrication des éléments combustibles comporte différentes étapes :

- Élaboration des matériaux (alliages de zirconium notamment) et des composants : tubes de gaines et pièces de structure ;
- préparation des poudres ( $\text{UO}_2$  enrichi) ou ( $\text{UO}_2$  et  $\text{PuO}_2$ ) ;
- 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' $\text{UO}_2$

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  $\text{UF}_6$ . 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  $\text{UO}_2$  un produit porogène et une certaine proportion d' $\text{U}_3\text{O}_8$ . Cette poudre  $\text{U}_3\text{O}_8$  très fine provient de la calcination des rebuts de fabrication (oxydation de l' $\text{UO}_2$  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  $\text{UO}_2$  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 diabololo) 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.

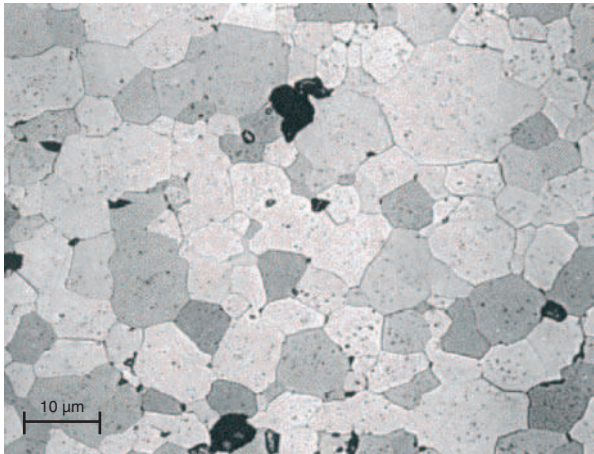


Fig. 8. Micrographie d'une céramique  $UO_2$  après attaque chimique révélant les grains.

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

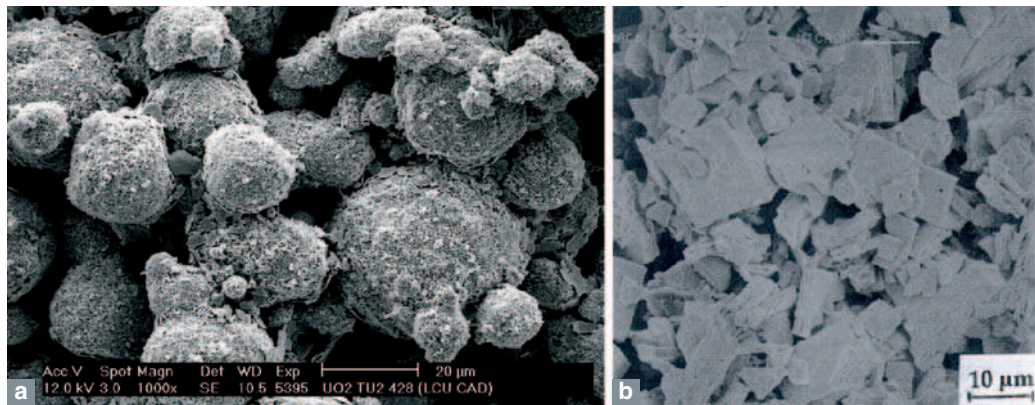


Fig. 9. Photographies au MEB montrant les agglomérats de poudres d' $UO_2$  ADU (ou TU2) et  $PuO_2$  actuellement utilisées dans la fabrication des combustibles MOX à l'usine MELOX.  
a. Poudre d' $UO_2$  TU2 - b. Poudre de  $PuO_2$ .

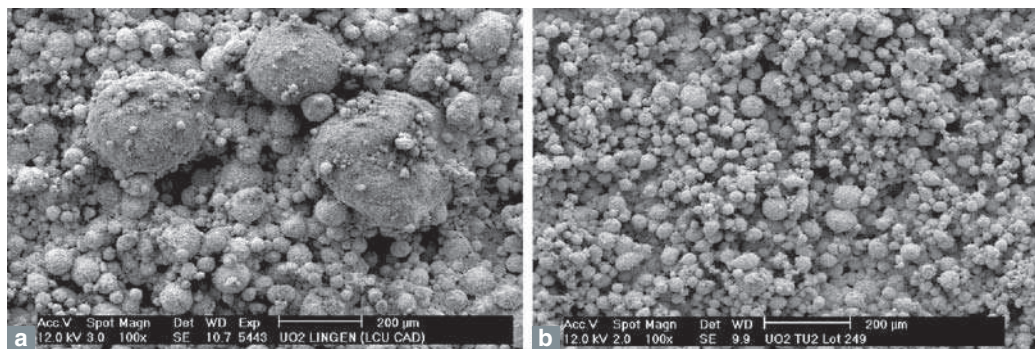


Fig. 10. Photographies au MEB montrant des agglomérats de poudres  $UO_2$  voie sèche comparés à ceux de la poudre d' $UO_2$  TU2.  
a. Poudre d' $UO_2$  voie sèche (AREVA ANF) - b. Poudre d' $UO_2$  voie humide TU2.

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.

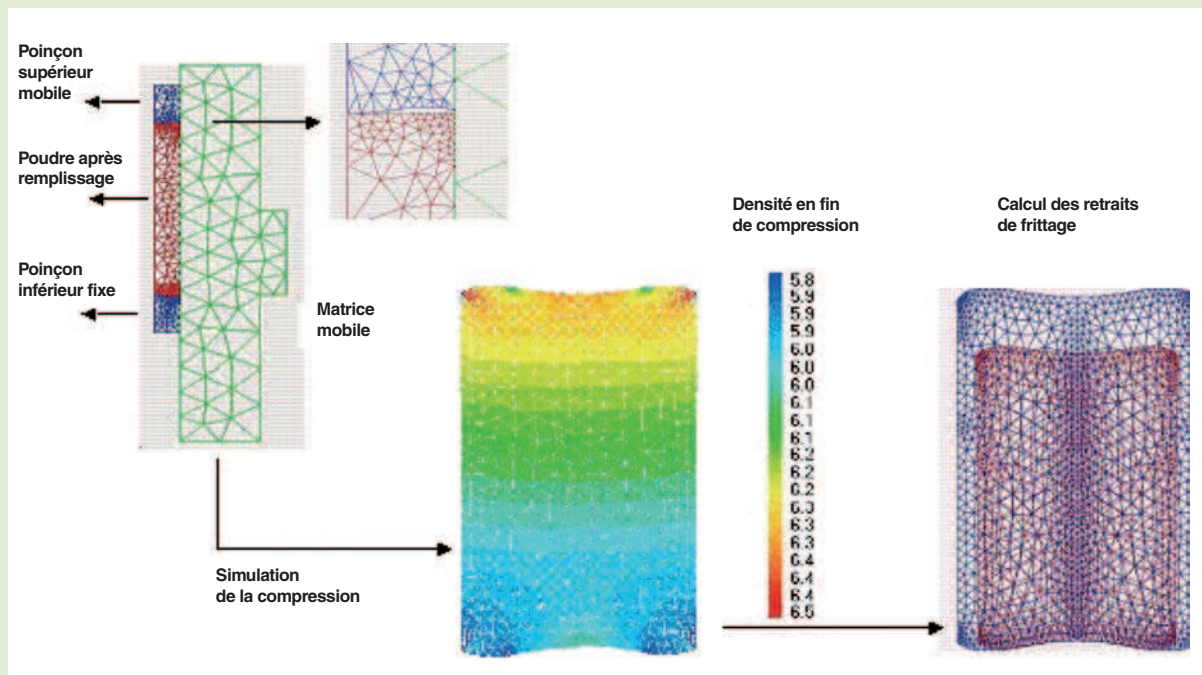


Fig. 11. Illustration des études sur le pressage des poudres MOX, utilisation de la modélisation aux éléments finis (code PRECAD), Cas d'un pressage simple effet.

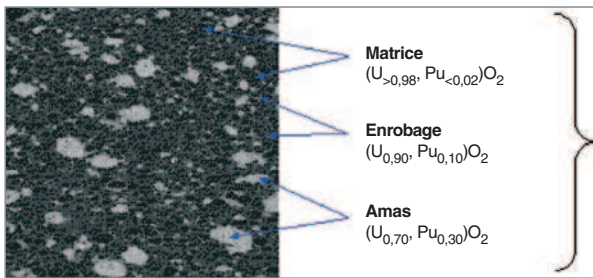


Fig. 12. Cartographie X du plutonium à la microsonde sur un combustible MOX, montrant les zones à différents teneurs en plutonium : matrice  $UO_2$ , phase d'enrobage et amas plutonifères.

## 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  $\beta$  vers 1 040 °C, puis il subit un traitement thermique toujours dans le domaine  $\beta$  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  $\alpha$  (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 $\text{UO}_2$ 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  $\text{UO}_2$  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.

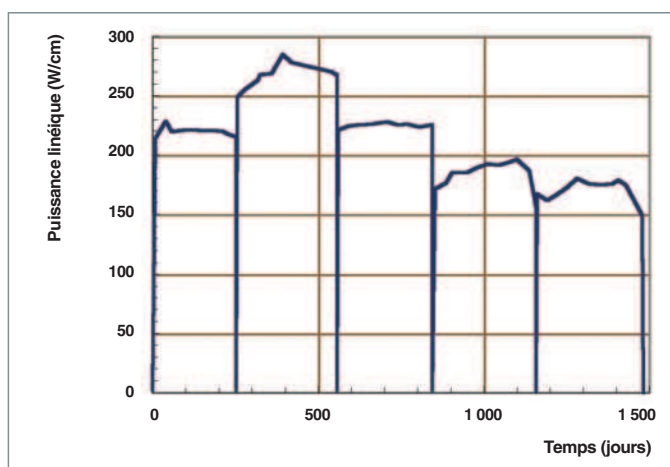


Fig. 13. Exemple d'évolution en fonction du temps de la puissance linéique moyenne d'un crayon  $\text{UO}_2$  irradié 5 cycles dans un réacteur à eau pressurisée.

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  $\beta$  et  $\gamma$ . 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 ( $\mu\text{m}$ ) 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  $\text{UO}_2$ . 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

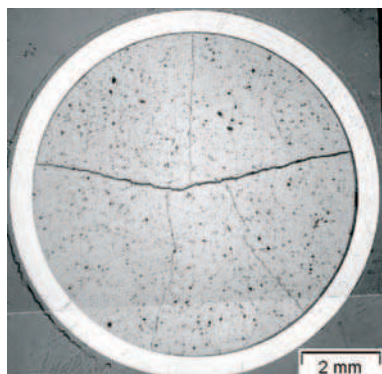


Fig. 14. Coupe radiale d'un combustible  $UO_2$  irradié 1 cycle. On note la formation des fissures radiales, le jeu pastille-gaine qui n'est pas encore fermé et le déplacement des fragments.

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 diablo ». 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  $\mu m$ ). 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

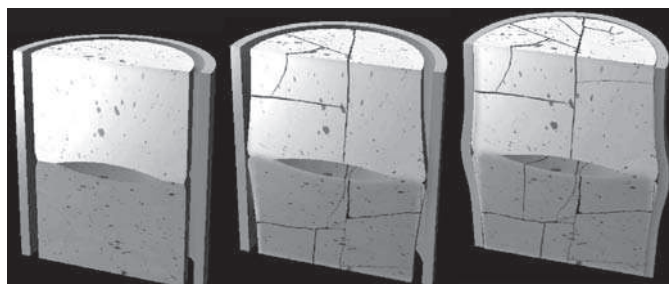


Fig. 15. Schématisation de la fracturation des pastilles, de la mise en diablo et de l'évolution du jeu entre les pastilles et la gaine au cours de l'irradiation.

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  $\mu m$  d'épaisseur, par diffusion de l'oxygène du combustible.

La forme en « diablo » 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

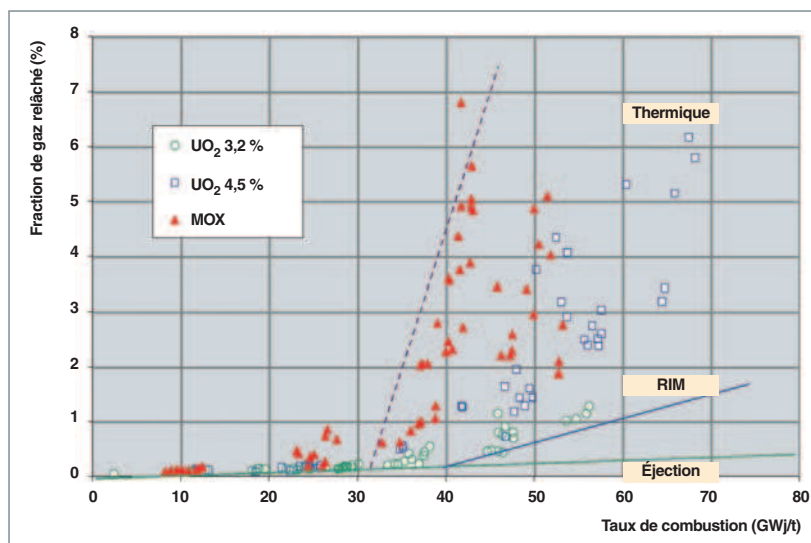


Fig. 16. Évolution en fonction du taux de combustion de la fraction de gaz de fission relâchés dans des crayons REP  $UO_2$  et MOX.

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

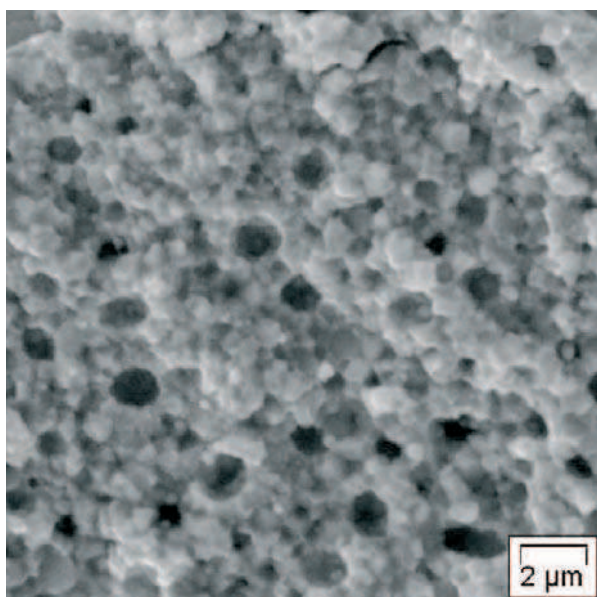


Fig. 17. Microstructure du combustible restructuré (HBS) Les grains initiaux d'une dizaine de microns ont été remplacés par des grains submicrométriques et des bulles de gaz de fission se sont formées.

de la température du combustible. Des mécanismes de diffusion thermiquement activés des atomes de gaz en solution solide dans les grains et de formation de chemins de relâchement par les joints de grains du combustible sont alors mis en cause. Le taux de relâchement des gaz peut alors, dans les conditions nominales d'irradiation, atteindre des valeurs de l'ordre de 3 % des gaz créés à 60 GWj/t pour un combustible  $UO_2$  et de l'ordre de 6 % sur un combustible MOX (fig. 16) et induire dans les volumes libres du crayon des pressions qui peuvent dépasser 10 MPa à chaud en fin d'irradiation à fort taux de combustion, donc une marge réduite par rapport à la pression du caloporteur, surtout dans les combustibles MOX qui sont plus sollicités que les  $UO_2$  (puissance linéique plus

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  $\mu m$  à partir des grains initiaux d'environ 10  $\mu m$  de diamètre [3]. Lors de cette restructuration, l'essentiel du gaz des zones touchées forme des bulles d'environ 0,6  $\mu m$  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  $UO_2$  (« 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 **épithermiques\*** par l'uranium. Ce phénomène apparaît après 40 GWj/t.

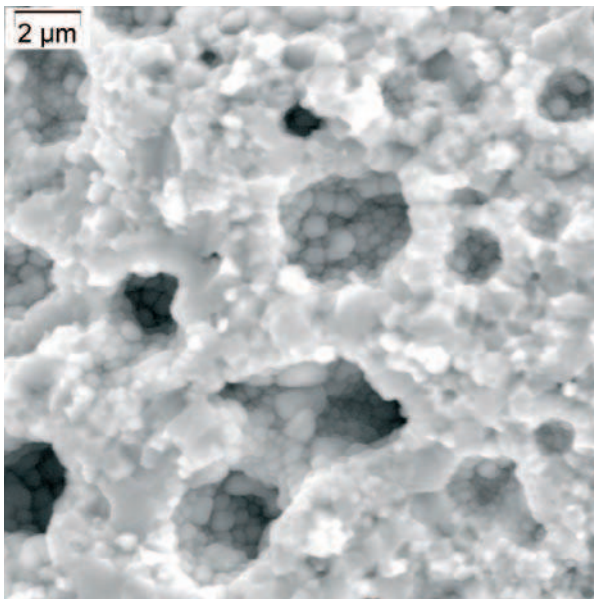


Fig. 18. Coalescence des bulles de la microstructure HBS dans une zone à très fort taux de combustion (180 GWj/t) dans un amas de combustible MOX.

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.

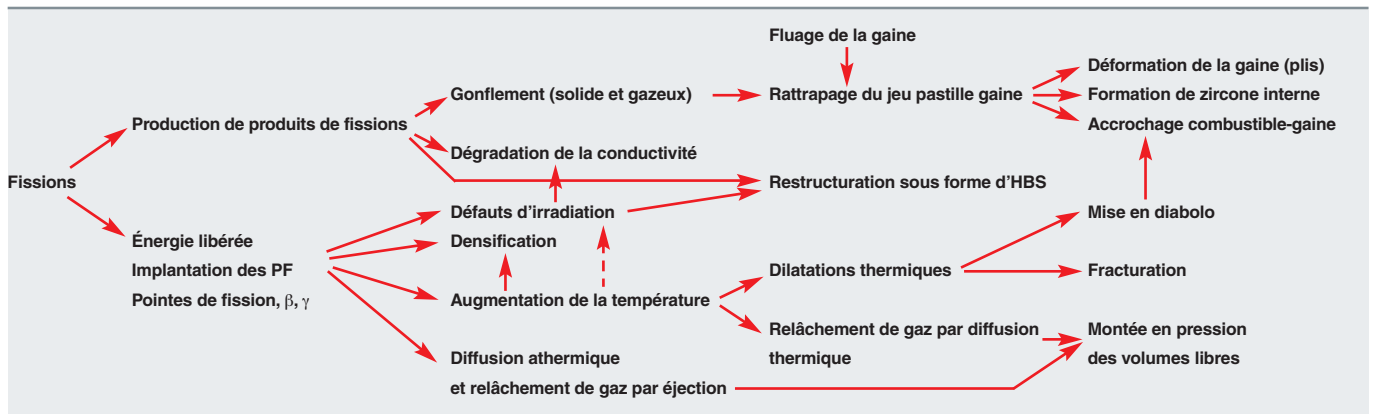


Fig. 19. Principaux phénomènes intervenant dans le combustible REP sous irradiation.

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

# 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 « ressuaage ». 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.

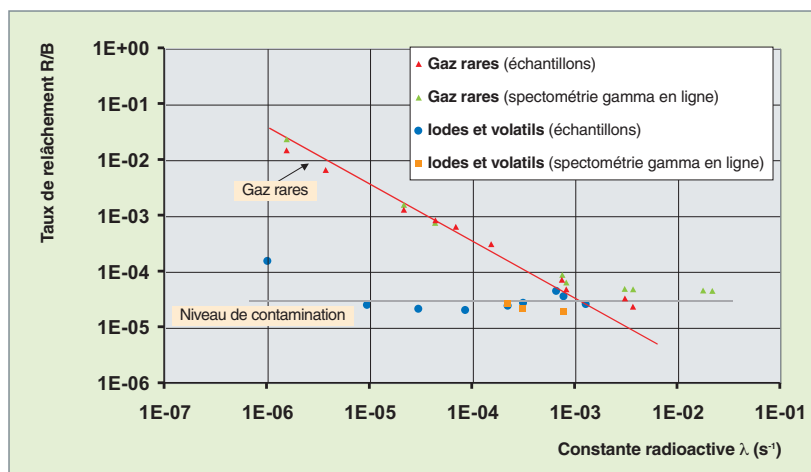


Fig. 22. Exemple de taux de relâchement mesuré sur un crayon de combustible expérimental à 150 W/cm.

la constante radioactive  $\lambda$  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.

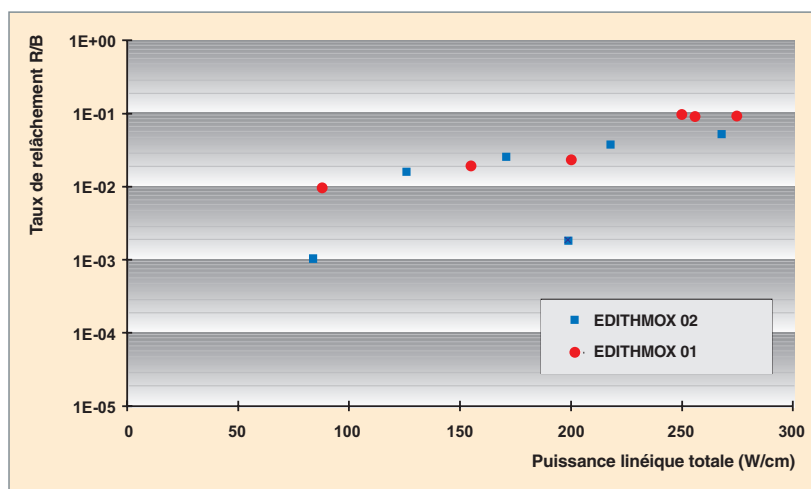


Fig. 23. Exemple d'évolution du taux de relâchement, en fonction de la puissance linéique (cas d'un crayon MOX neuf « 01 » et d'un crayon MOX fort taux « 02 »).

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'examen post-irradiatoire 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 UO<sub>2</sub> 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 UO<sub>2</sub> 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,

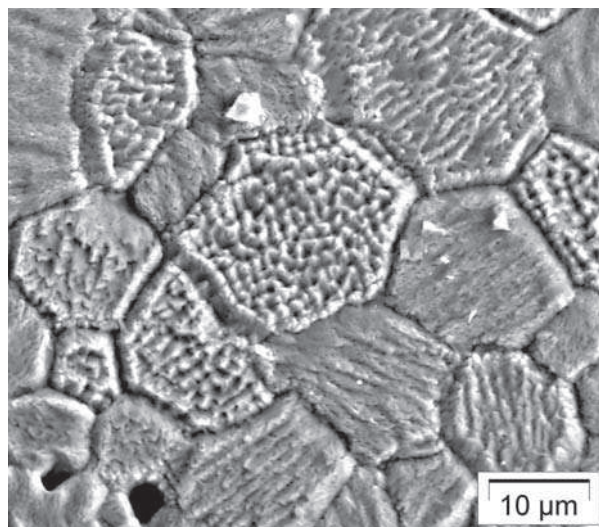


Fig. 24. Surface d'un évidement en extrémité de pastille, mise en évidence de l'évolution de la surface des grains sous irradiation et de la différence de cette évolution suivant l'orientation cristalline.

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'UO<sub>2</sub> ou l'(U, Pu)O<sub>2</sub>, 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 10<sup>19</sup> fissions m<sup>-3</sup>s<sup>-1</sup>, le coefficient de diffusion D est de 5 10<sup>-20</sup>m<sup>2</sup>/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/m<sup>3</sup>. 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.

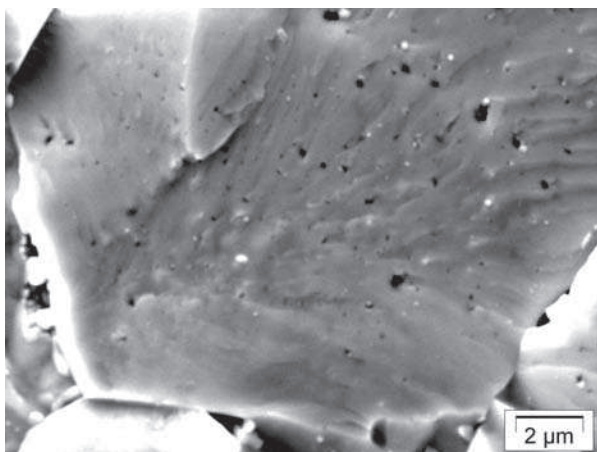


Fig. 25. Formation de bulles visibles au MEB dans les grains du combustible à fort taux de combustion au centre des pastilles.

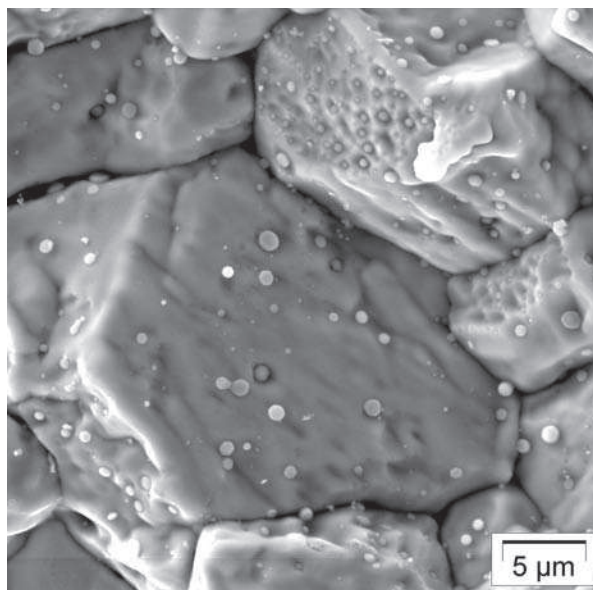


Fig. 26. La surface des grains d'un combustible MOX après irradiation. Les taches rondes sont des précipités de produits de fission métalliques.

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

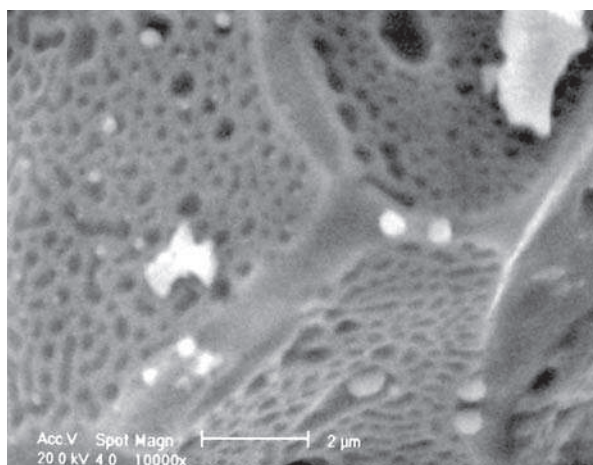


Fig. 27. Surface d'un grain après une rampe de puissance conduisant à des températures élevées au centre de la pastille combustible. Des bulles se sont formées aux joints de grains, certaines ont coalescé, des canaux se sont formés aux joints triples. Là encore, il y a des précipités métalliques.

## 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-

combustible 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  $\mu\text{m}$  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.

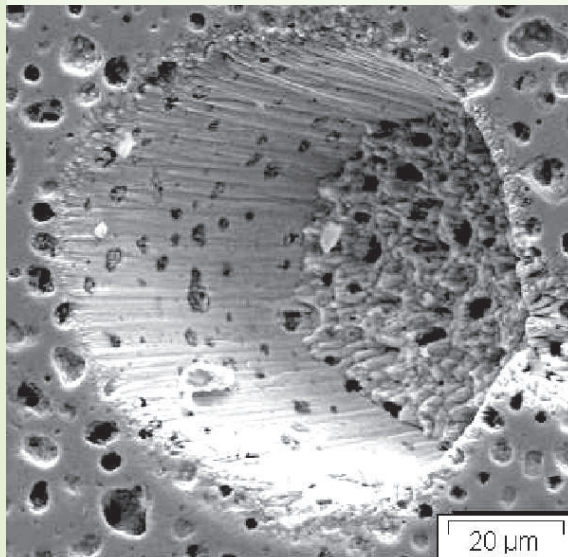
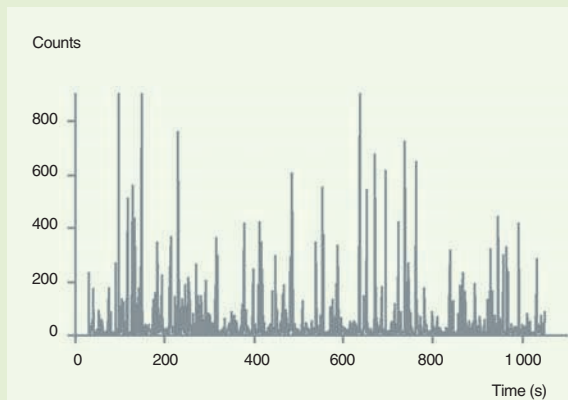


Fig. 28. Exemple de mesure au SIMS : profil en profondeur du xénon dans une zone de précipitation de gaz de fission sur une pastille d' $\text{UO}_2$  irradiée à 60 GWj/t. Chaque pic correspond à une bulle de gaz percée lors de l'abrasion du combustible.

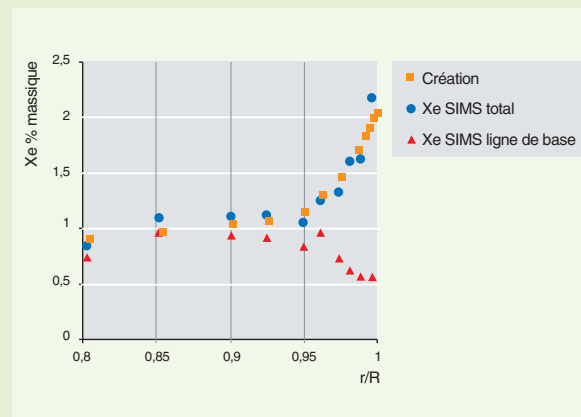


Fig. 29. Profils de concentration en xénon mesuré au SIMS en périphérie d'une pastille d' $\text{UO}_2$  irradiée à 60 GWj/t. L'essentiel du gaz sorti des grains (écart entre les carrés et les triangles) est retenu dans les bulles (cercles).

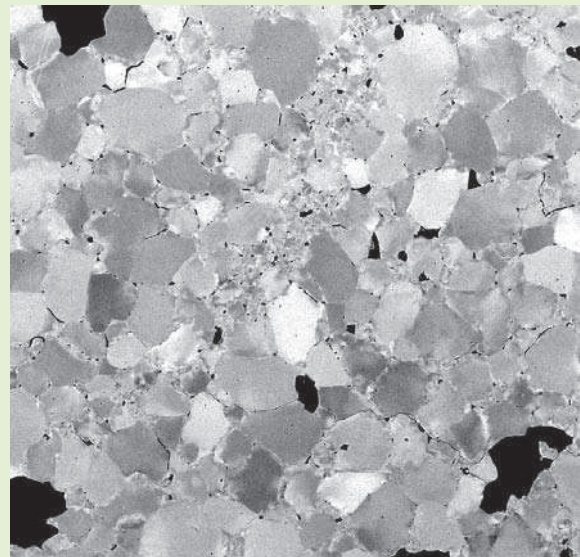


Fig. 30. L'examen au MEB permet de révéler les grains du cristal et d'établir un spectre des porosités ainsi que leur position intra-granulaire ou sur le joint de grain.

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 UO<sub>2</sub> 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 modélisées :

- 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' $\text{UO}_2$  et le combustible avec **poison\*** consommable ( $\text{UO}_2 + \text{Gd}_2\text{O}_3$ ) ; 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 diablo 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 UO<sub>2</sub> 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 UO<sub>2</sub> 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 $\text{UO}_2$ 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  $\mu\text{m}$ ), 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  $\text{UO}_2$ .

## 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  $\text{UO}_2$  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  $\text{UO}_2$ , 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*.

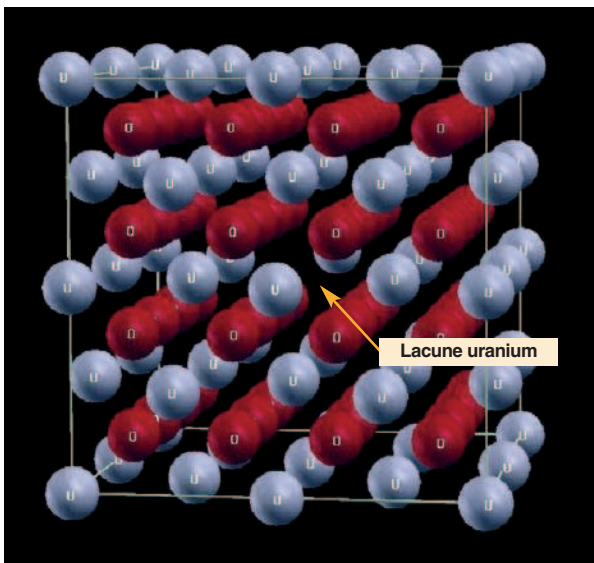


Fig. 31. Supercellule considérée pour modéliser les défauts ponctuels dans l' $\text{UO}_2$ , ici, par exemple, les lacunes d'uranium. Les atomes d'uranium sont représentés en bleu, ceux d'oxygène en rouge. Le site de l'atome d'uranium manquant (lacune) est repéré par la flèche.

### Variation de volume de la maille d' $\text{UO}_2$

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' $\text{UO}_2$

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' $\text{UO}_2$  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' $\text{UO}_2$

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  $\text{UO}_2$ . En pratique, pour initier le calcul, on fixe



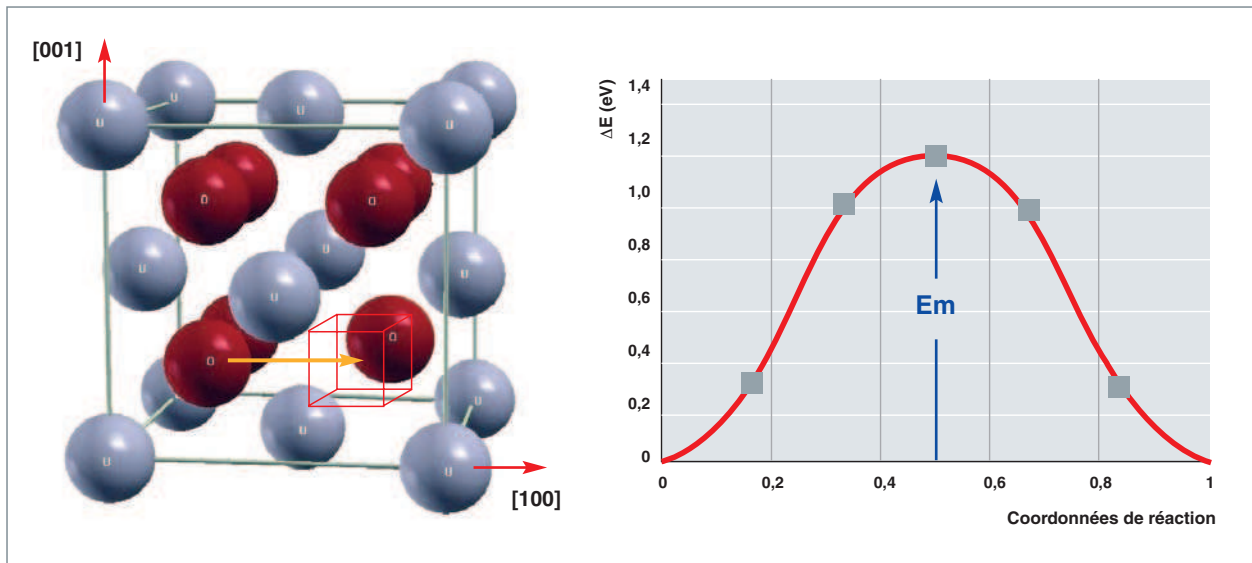


Fig. 32. À gauche, exemple de chemin de migration exploré pour l'étude des propriétés de transport de défauts oxygène : migration selon la direction cristallographique [100] d'une lacune d'oxygène.

À droite, barrière d'énergie  $\Delta E$  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<sub>2</sub>, 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<sub>2</sub>. La situation est plus tranchée pour le xénon, dont l'énergie de solution est de l'ordre de 6 eV dans l'UO<sub>2</sub>. 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<sub>2</sub> 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.

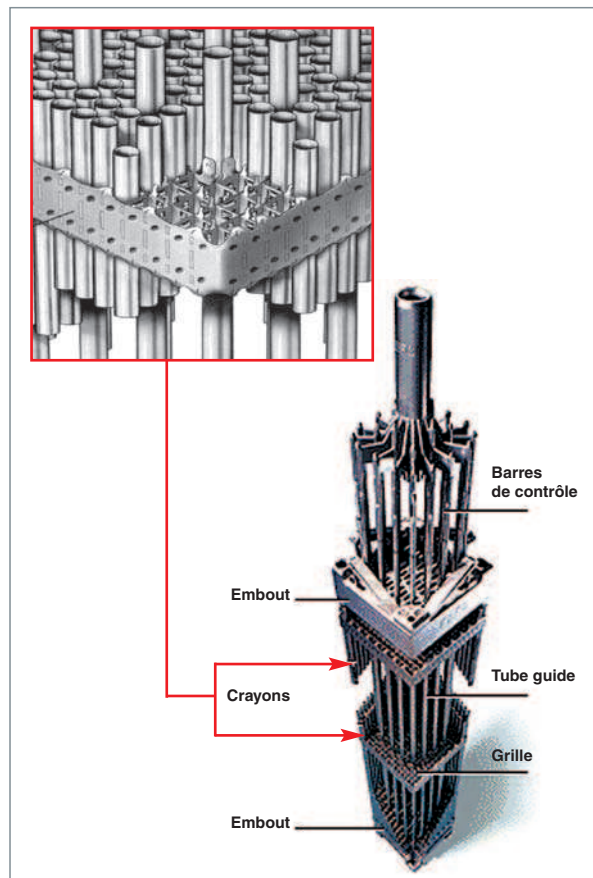


Fig. 33. Assemblage combustible des réacteurs à eau sous pression (REP).

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 :

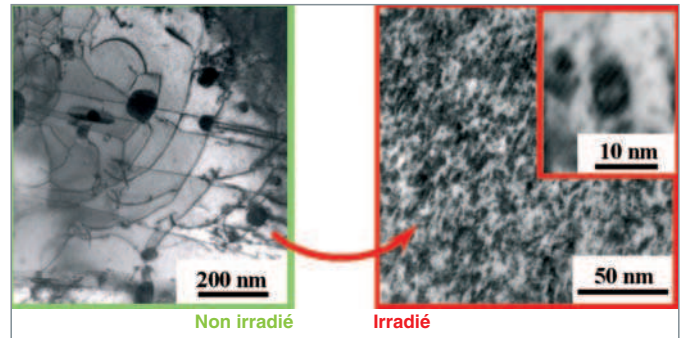


Fig. 34. Images en microscopie électronique d'un alliage de zirconium avant et après irradiation.

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/m<sup>2</sup>, 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 continûment 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				
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		

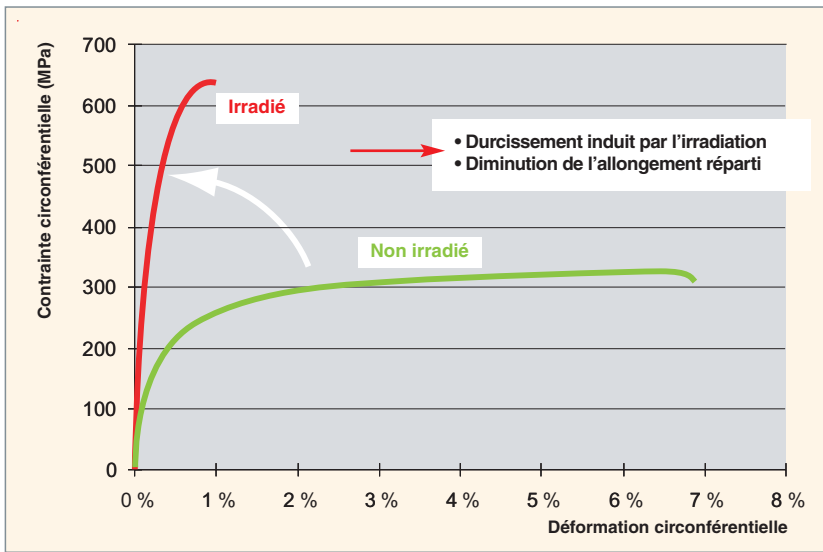


Fig. 35. Évolution du comportement mécanique en écrouissage à 350 °C (essai d'éclatement) d'un alliage de Zr avant/après irradiation ( $10^{25}$  n/m<sup>2</sup>).

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.

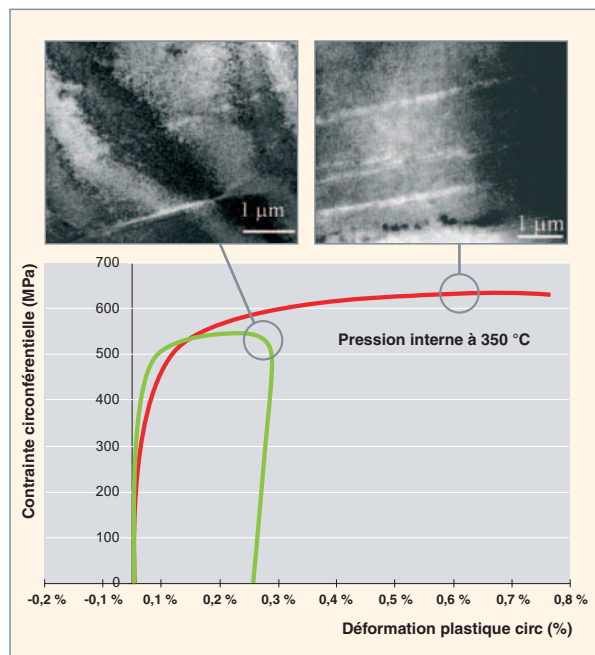


Fig. 36. Canalisation observée au cours d'essais d'éclatement à deux niveaux de déformation.

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

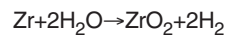
contraintes internes. En effet, celles-ci sont plus élevées dans le cas du matériau irradié que dans le cas du matériau non irradié, du fait du caractère très hétérogène de la déformation (forte localisation de la déformation dans les canaux).

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  $\mu\text{m}$  [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  $\mu\text{m}$ , 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<sup>®</sup> développé par AREVA NP (fig. 39). L'énergie d'activation  $\Delta H_2$  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  $\mu\text{m}$ , 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'emballlement du phénomène de corrosion (oxydation et hydruration) pour les températures élevées interdit de tolérer une épaisseur d'oxyde supérieure à une centaine de  $\mu\text{m}$ . 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

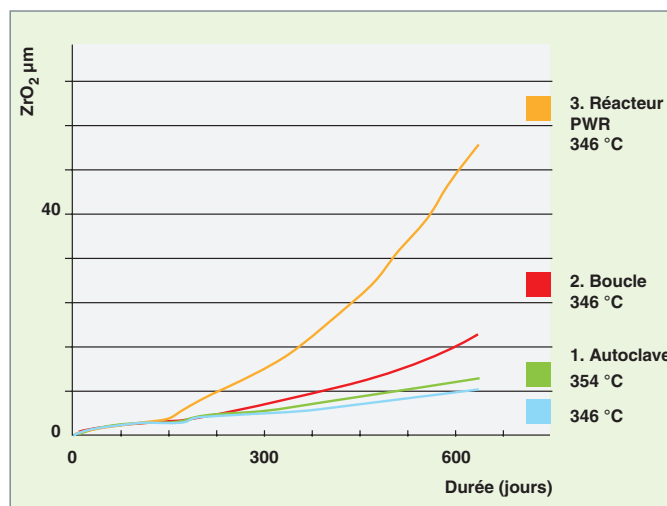


Fig. 37. Épaisseur de zircone formée en fonction du temps, déduite d'essais effectués au CEA pour du Zircaloy oxydé sous différentes conditions de corrosion : 1 en autoclave (sans gradient thermique, avec 2 températures différentes) ; 2 en boucle (avec chauffage électrique de l'intérieur de la gaine 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 H<sub>2</sub>, 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 (ZrCr<sub>2</sub>) 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.

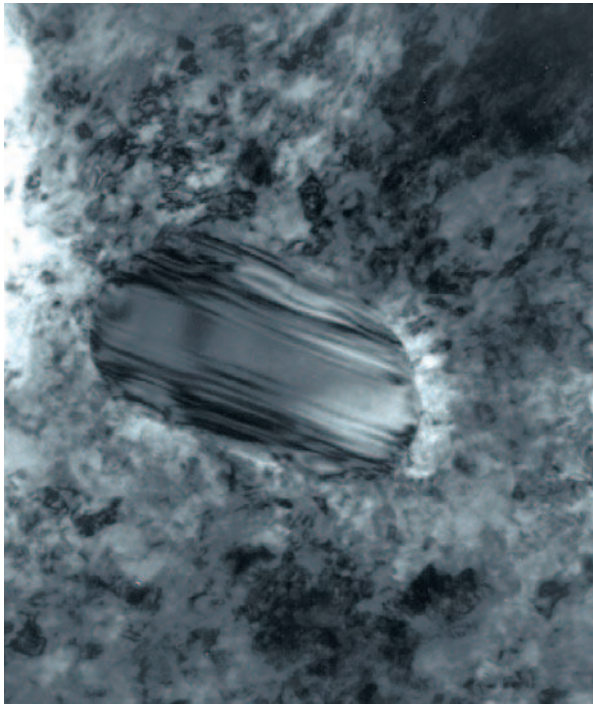


Fig. 38. Précipité intermétallique  $Zr(Fe, Cr)_2$  observé au microscope électronique à transmission dans la couche d'oxyde interne dense (référence [7]).

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<sup>®</sup> 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. LELIÈVRE, P. BARBERIS, X. ILTIS 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<sup>e</sup> volume des ASM Handbooks (2005).

**Didier GILBON,**  
*Département des matériaux pour le nucléaire*  
**et Bernard BONIN,**  
*Direction scientifique*

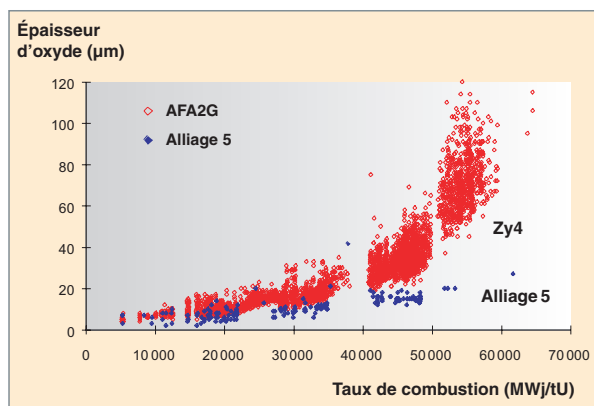


Fig. 39. Épaisseurs d'oxyde sur crayons Zy-4 avec combustible  $UO_2$  [6]. On observe une accélération de la corrosion pour les taux de combustion élevés ou les temps de séjour longs. Le gain apporté par le nouvel alliage M5<sup>®</sup> apparaît clairement.





# 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-

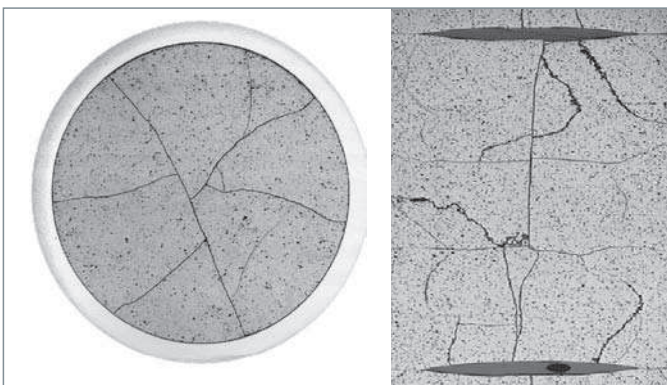


Fig. 40. Fissuration de la pastille UO<sub>2</sub> après 2 cycles REP annuels.

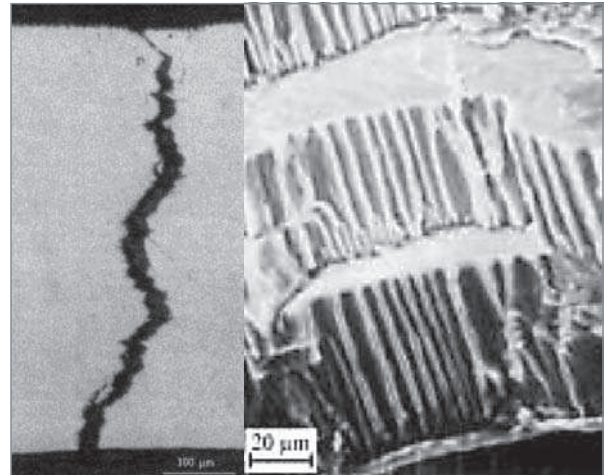


Fig. 41. Coupe transversale d'une fissure de gaine débouchante [1] et signature du faciès montrant les plans de quasi-clivage et les cannelures [2].

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

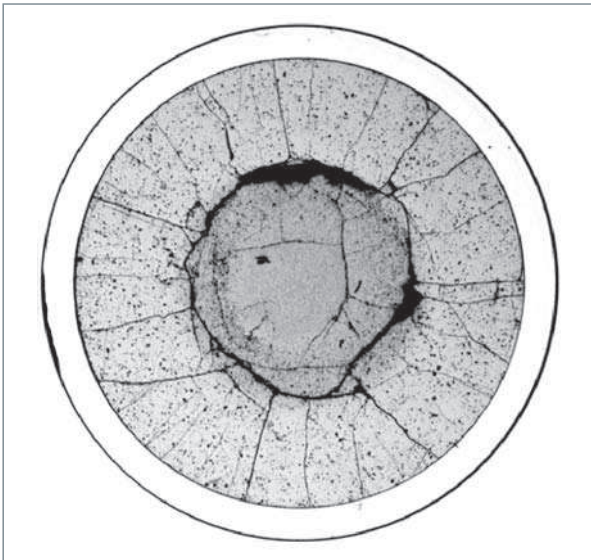


Fig. 42. Fissuration d'une pastille  $UO_2$  ayant subi 2 cycles REP annuels puis 12 heures sous une puissance linéique de 430 W/cm.

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 circconférentielle, 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 manoeuvrabilité 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 finis 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.

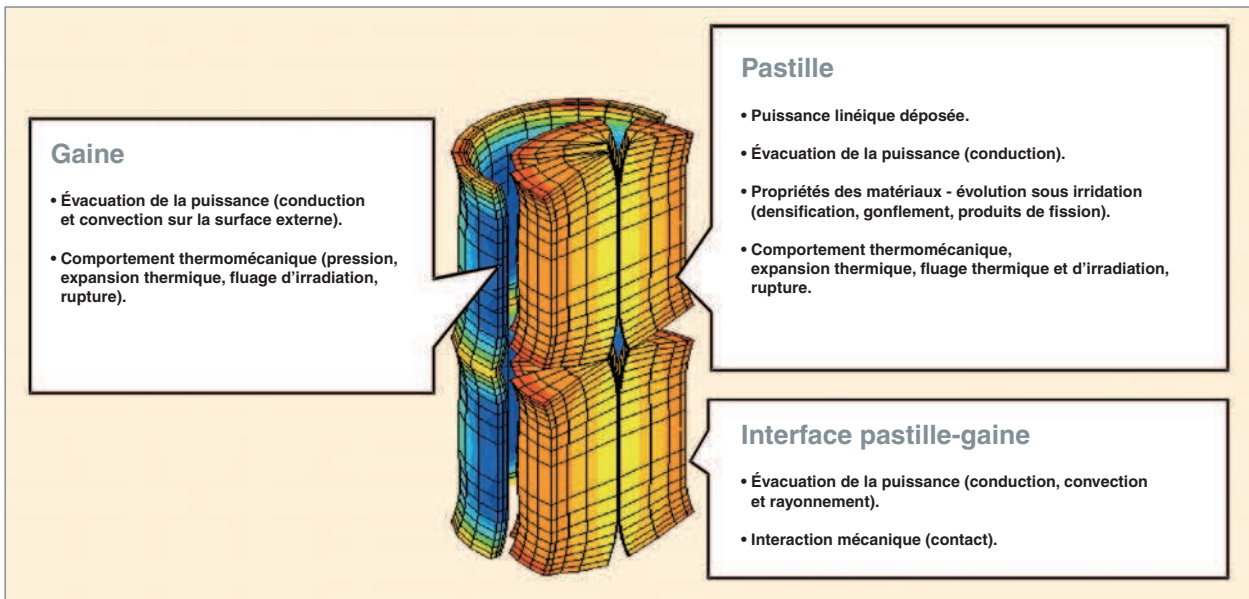


Fig. 43. Modélisation thermo-mécanique du combustible REP.

### 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 diabolisme 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.

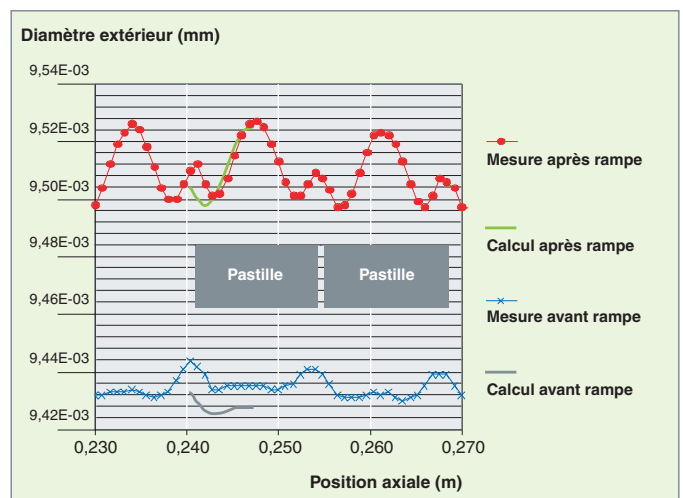


Fig. 44. Diamètres externes gaines calculés et mesurés avant et après une rampe.

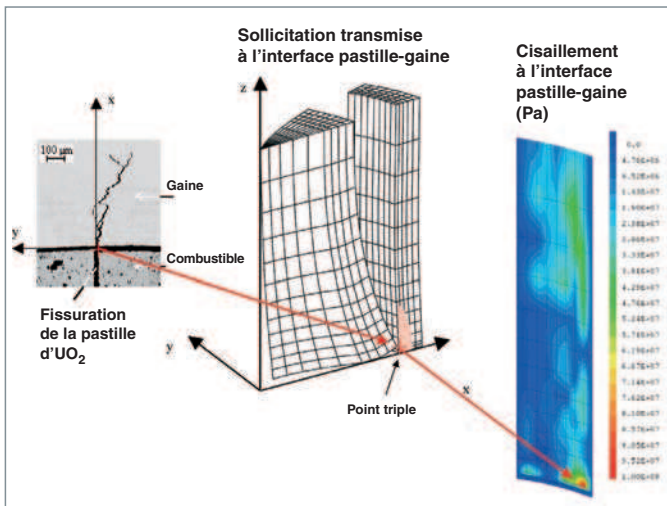


Fig. 45. Localisation de la contrainte de cisaillement à la fin du transitoire de rampe.

### 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.

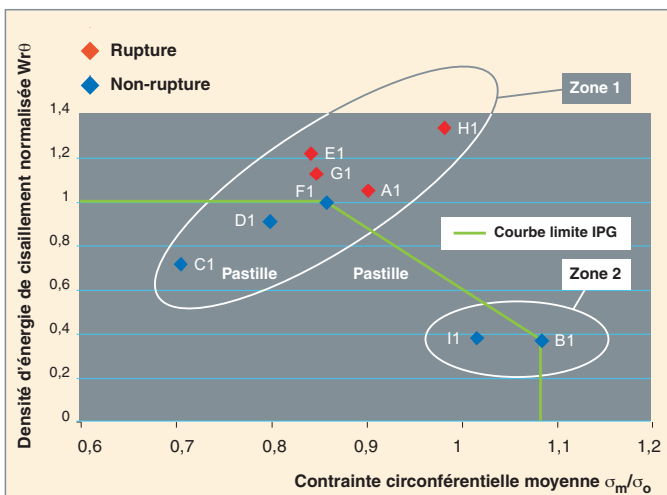


Fig. 46. Résultats de rampes comparés à un critère de rupture IPG à deux paramètres : énergie de cisaillement à l'interface pastille-gaine, et contrainte moyenne circonférentielle.

### 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  $\sigma_m$  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 $\text{UO}_2$ et MOX avancées

**D**ans un but de rentabilité économique, les exploitants nucléaires visent à augmenter le taux de combustion des combustibles  $\text{UO}_2$  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  $\text{UO}_2$  ou MOX possédant une microstructure très contrôlée, notamment en ajoutant des dopants au moment du frittage.

### Le combustible $\text{UO}_2$ dopé à l'oxyde de chrome

L'objectif prioritaire d'amélioration des performances du combustible  $\text{UO}_2$  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' $\text{UO}_2$  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  $\text{UO}_2$  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  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  ou  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , avec utilisation ou non d'un deuxième additif  $\text{SiO}_2$ , 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  $\mu\text{m}$  ou plus, à comparer aux tailles de grains standards d'environ 10  $\mu\text{m}$  (voir fig. 47).

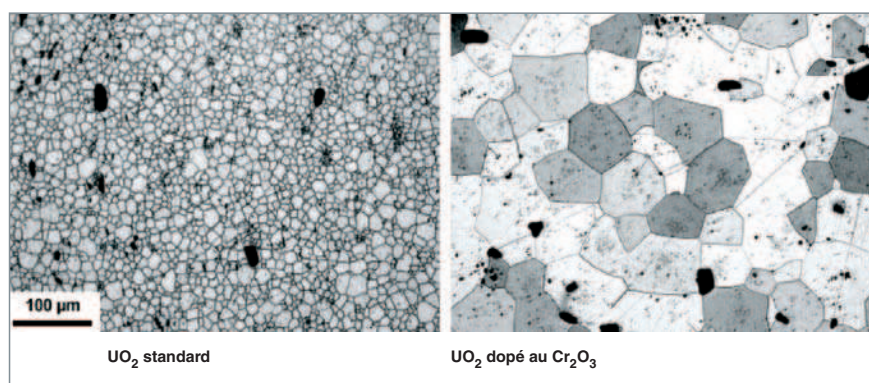


Fig. 47. Tailles des grains dans un  $\text{UO}_2$  dopé à l'oxyde de chrome, comparée à celle dans un  $\text{UO}_2$  standard.

- 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  $\text{UO}_2$  dopés par rapport à celles de l' $\text{UO}_2$  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' $\text{UO}_2$  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' $\text{UO}_2$  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' $\text{UO}_2$  par un relâchement élevé des gaz de fission (voir chapitre « Le comportement des combustibles  $\text{UO}_2$  et MOX en réacteur »). Ce relâchement plus élevé dans les MOX résulte d'un historique d'irradiation plus sévère que celui des crayons  $\text{UO}_2$  (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' $\text{UO}_2$  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  $\text{UO}_2$ .

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' $\text{UO}_2$ , on vise à faire

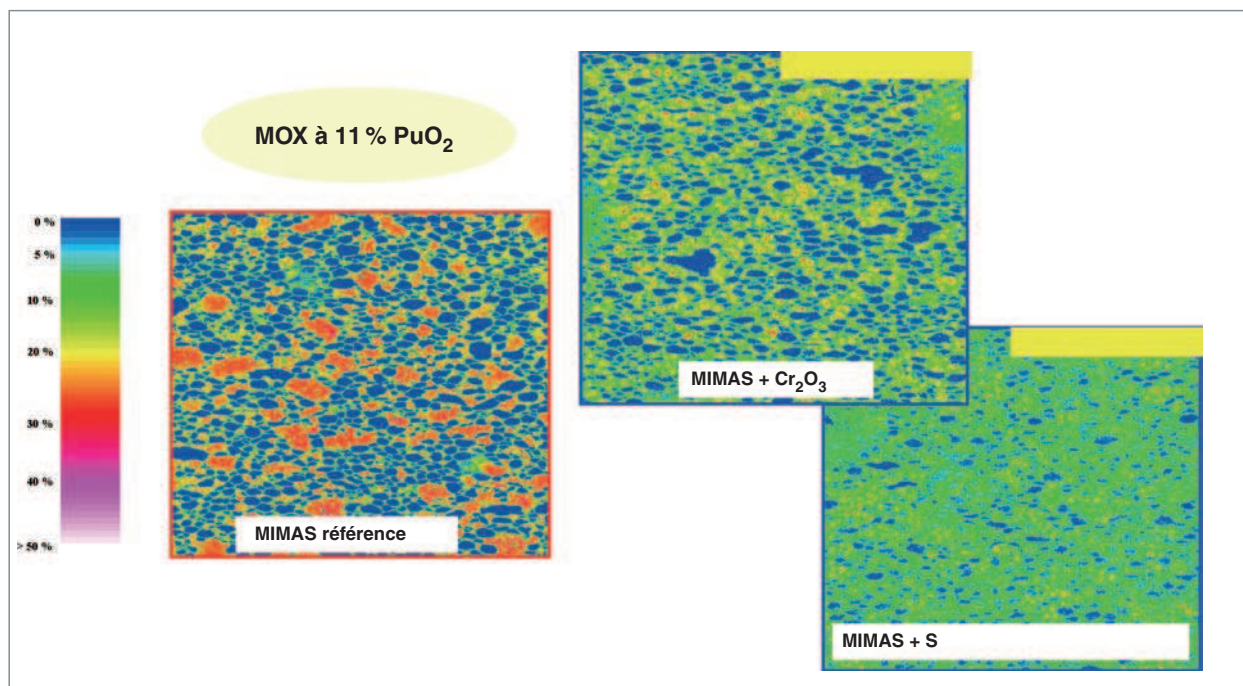


Fig. 48. Cartographies microsonde de combustible MOX MIMAS avec additifs oxyde de chrome et soufre comparées à un MOX standard.



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.

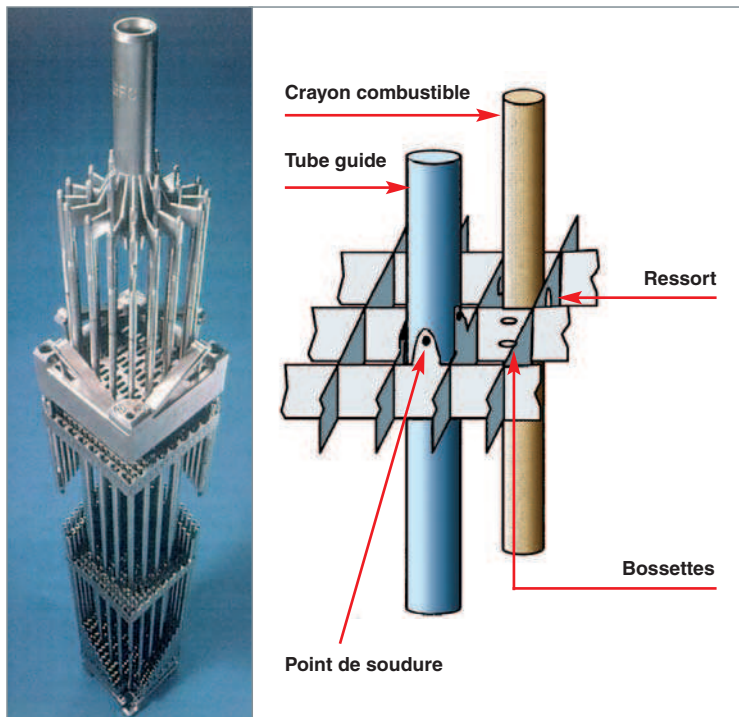


Fig. 49. Assemblage combustible + grappe de contrôle.  
Schéma de principe d'une cellule de grille AFA.

## 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].

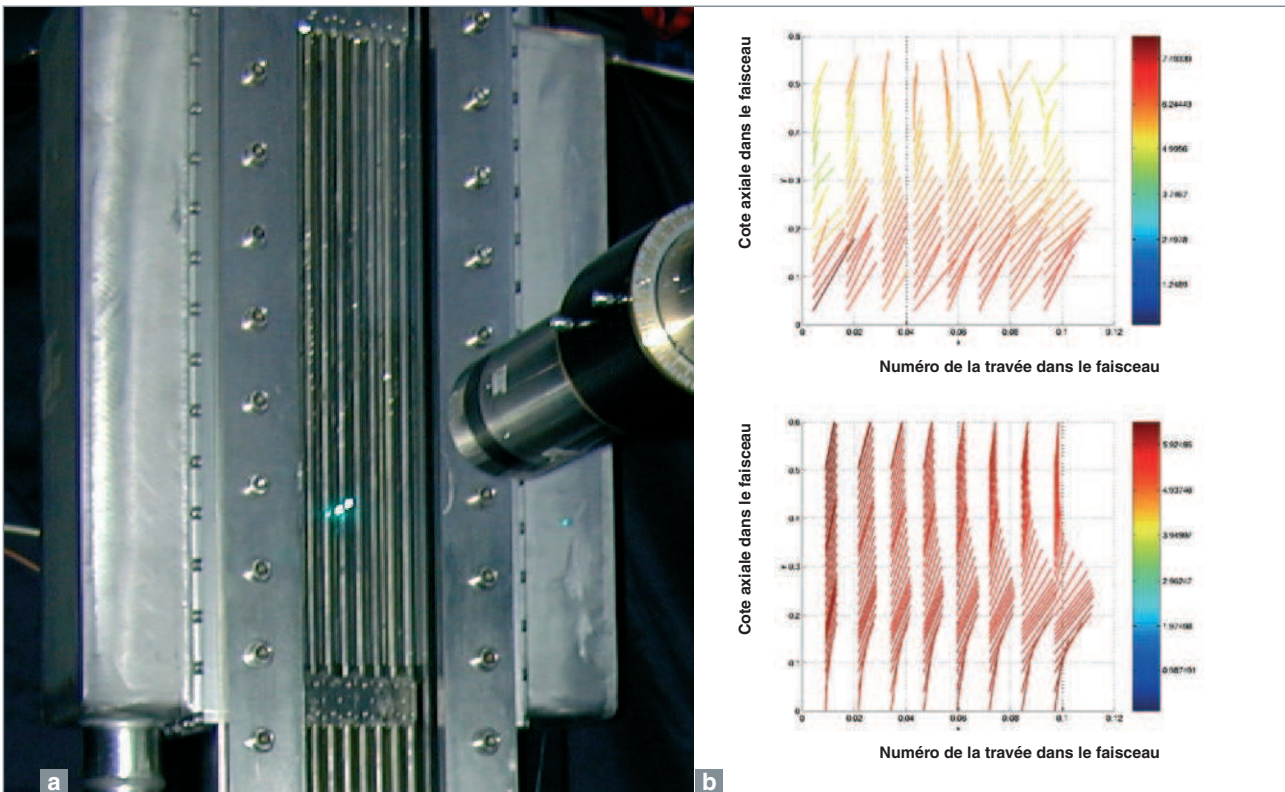


Fig. 50. Photo du banc de vélocimétrie laser installé sur le dispositif expérimental dédié à la caractérisation des écoulements et aux mesures des efforts sur le faisceau combustible (a).

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).

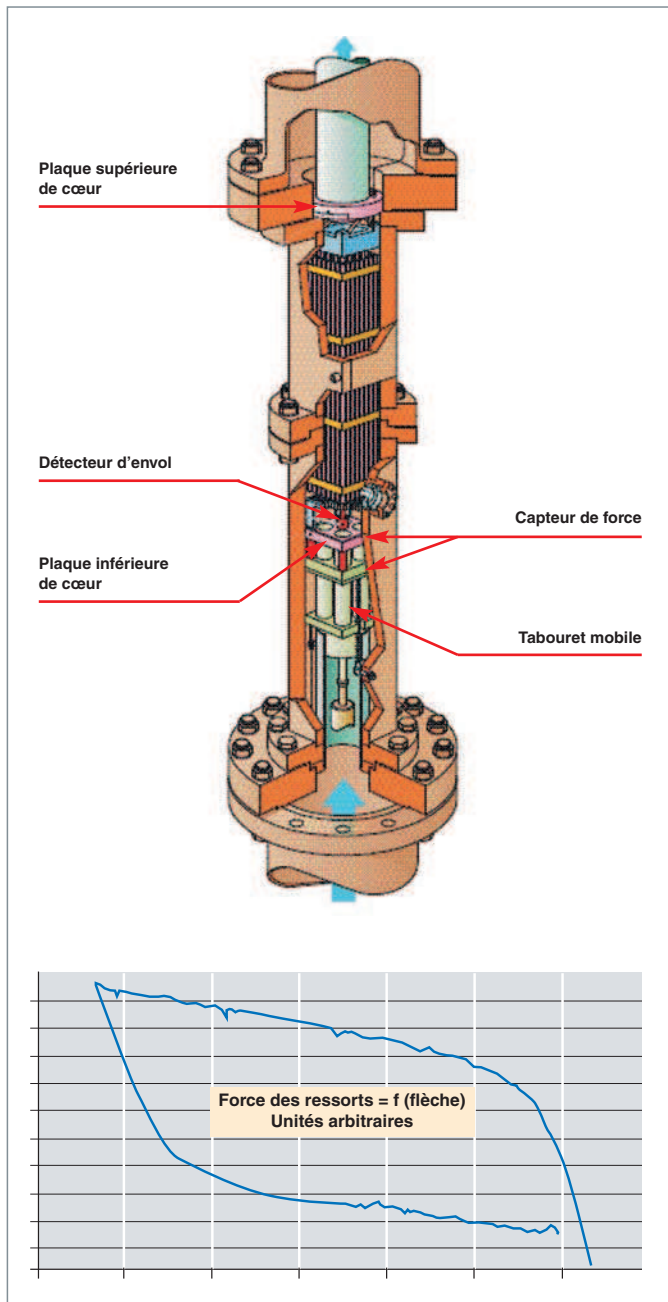


Fig. 51. Schéma du dispositif expérimental dédié à la caractérisation du système de maintien (HERMÈS T/mono assemblage échelle 1) – Illustration de la courbe d'hystérésis obtenue expérimentalement.

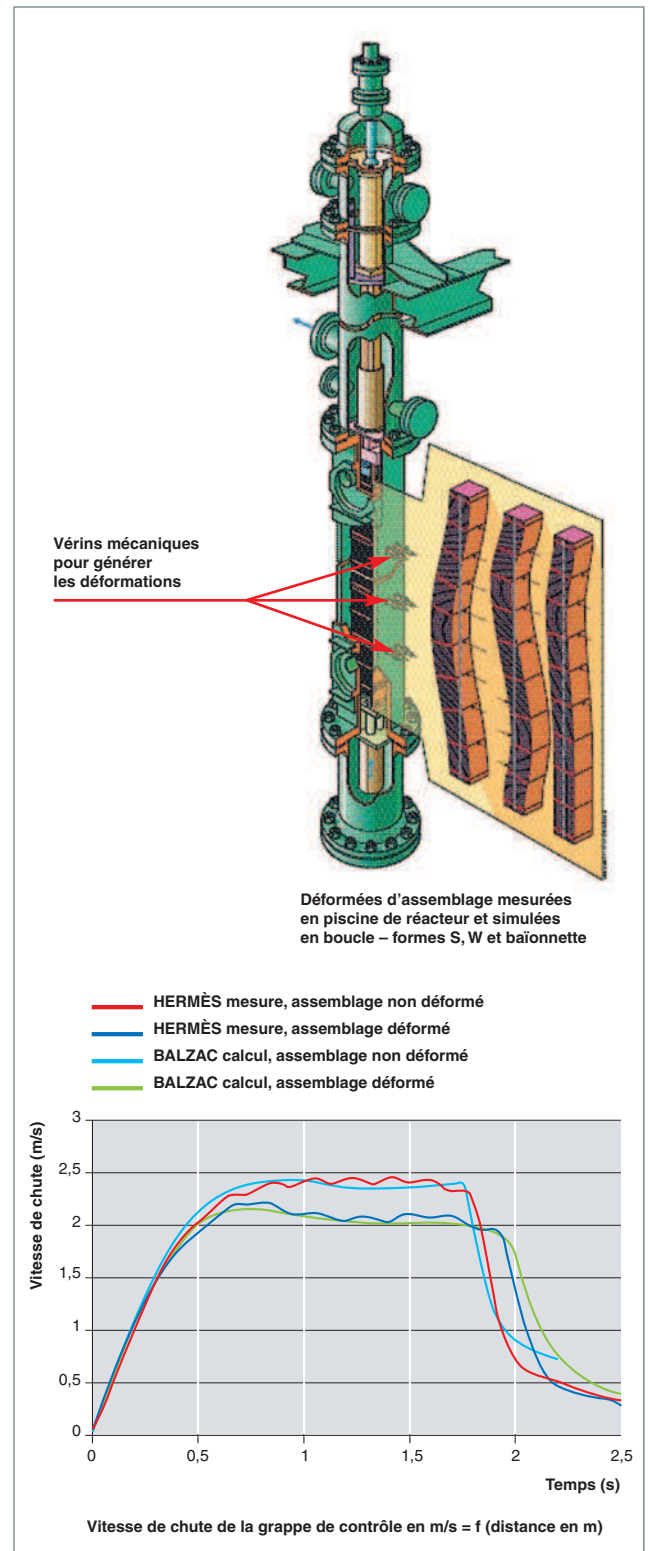


Fig. 52. Schéma du dispositif expérimental dédié à la mesure de cinétique de chute pour différentes déformations de l'assemblage combustible.

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 ( $\sigma_r$ ) de la réponse modale (pour le mode  $r$ ) s'écrit :

$$\sigma_r(x) = F_{\text{fluide}} \times H_{\text{structure}} \times \sqrt{f_{Rr} \bar{\Phi}_{fc}(f_{Rr})} a_r \quad (1)$$

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

$\bar{\Phi}_{fc}(f_{Rr})$  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.

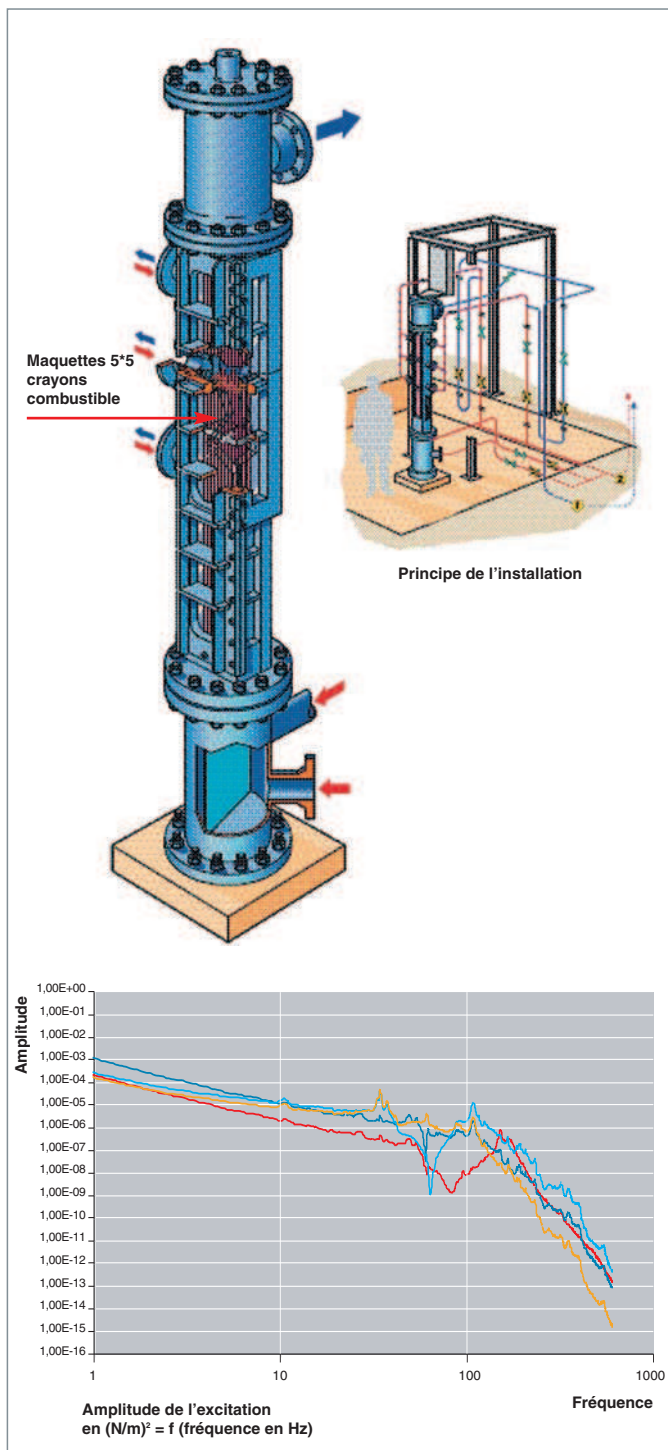


Fig. 53. Schéma du dispositif expérimental dédié à l'évaluation par méthode inverse des spectres d'excitation turbulente de l'écoulement (GRILLON froid) – Illustration du spectre en fréquence des efforts obtenus (donnée d'entrée des codes de calcul de la réponse vibratoire du crayon).

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 raideurs 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

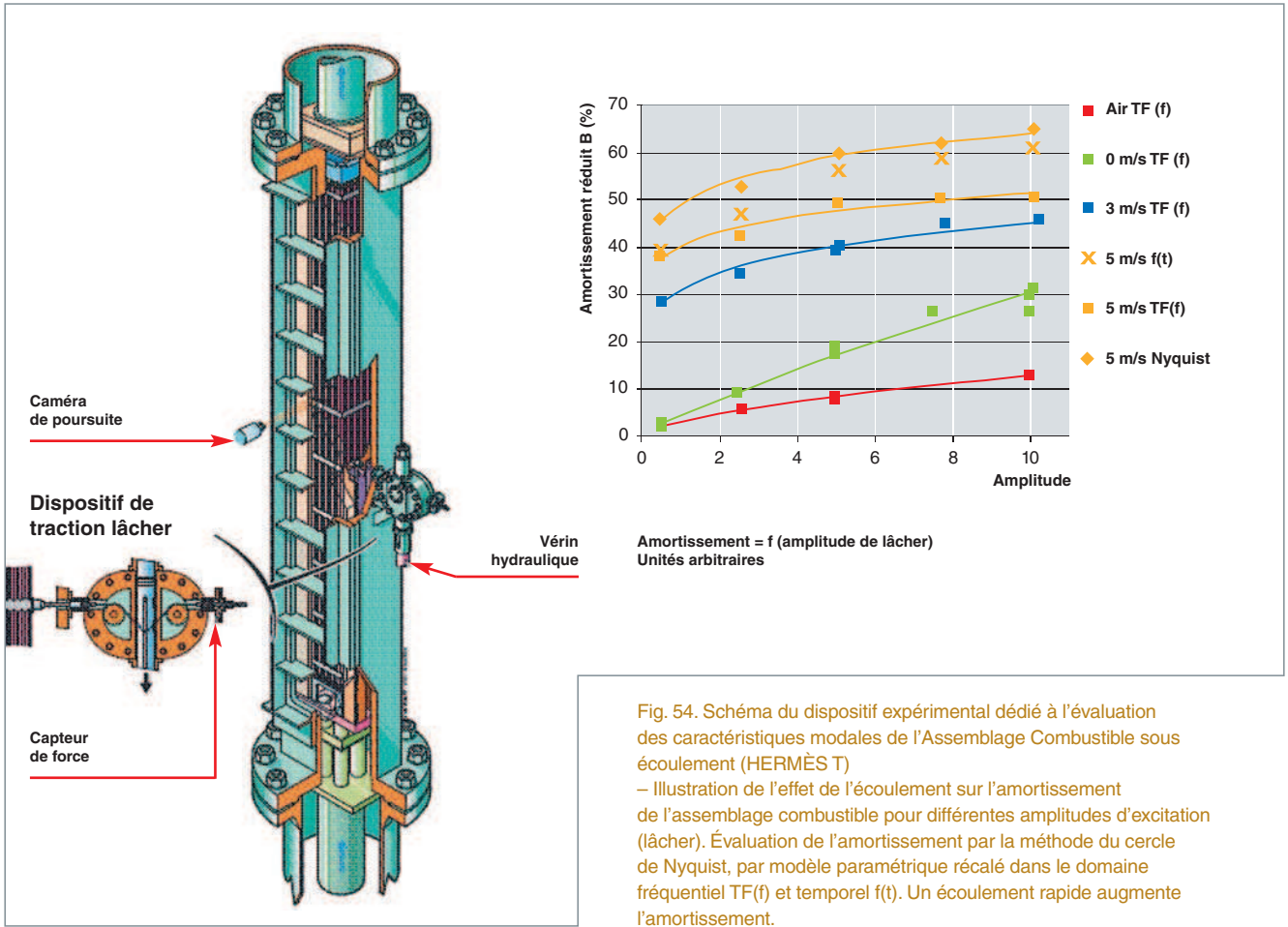


Fig. 54. Schéma du dispositif expérimental dédié à l'évaluation des caractéristiques modales de l'Assemblage Combustible sous écoulement (HERMÈS T) – Illustration de l'effet de l'écoulement sur l'amortissement de l'assemblage combustible pour différentes amplitudes d'excitation (lâcher). Évaluation de 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.

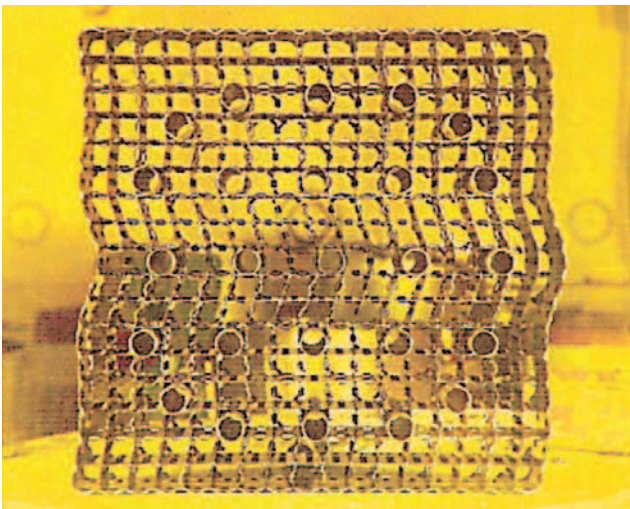


Fig. 55. Photographie d'une grille irradiée après essai de flambage – Illustration de la diminution de la tenue au flambage sur grilles irradiées.

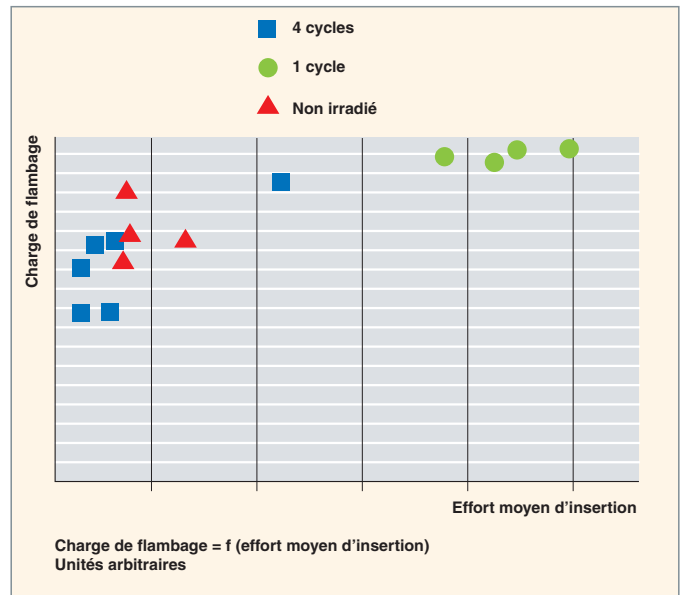


Fig. 56. Graphe de la charge de flambage en fonction de l'effort moyen d'insertion. La charge de flambage diminue avec le nombre de cycles d'irradiation / effet de la relaxation mécanique des ressorts de cellule de grille.



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 FRA-MATOME 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 :

<b>Classe 1</b>	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.
<b>Classe 2</b>	Incidents de fréquence modérée (occurrence annuelle par réacteur $0.01 < f < 1$ )	Anomalie déclenchant les systèmes de sécurité. Pas de rupture de la gaine.
<b>Classe 3</b>	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.
<b>Classe 4</b>	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"><li>• APRP (accident de perte de réfrigérant primaire, avec augmentation de la température gaine, oxydation et production d'<math>H_2</math>).</li><li>• RIA (accident de réactivité, avec dépôt d'une grande quantité d'énergie en qq 10 ms, libération de gaz occlus dans le combustible).</li><li>• SDD (séisme de dimensionnement).</li></ul>

# 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-

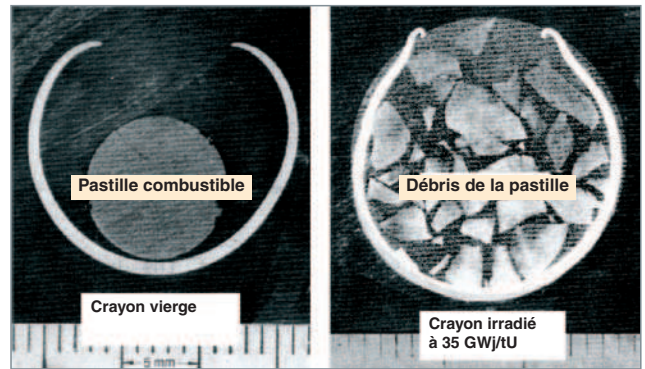


Fig. 58. Aspect de crayons expérimentaux (vus en coupe) suite à une séquence APRP (essais allemands FR2).

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 renouage 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 ;

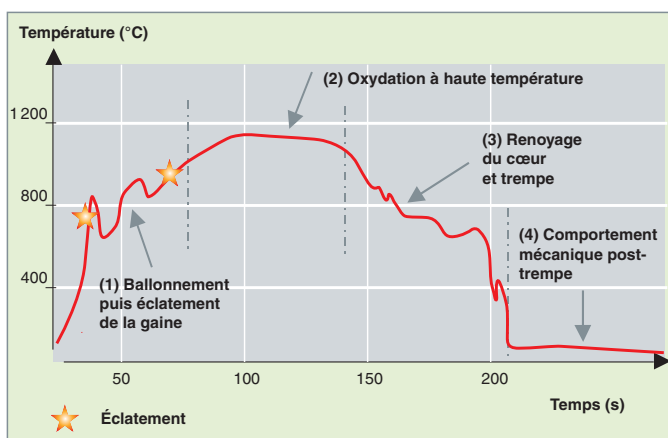


Fig. 57. Schéma d'un transitoire de température de la gaine lors d'un accident de perte de réfrigérant primaire. Conséquences sur le comportement du gainage combustible.

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↔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 « Deziro » 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).

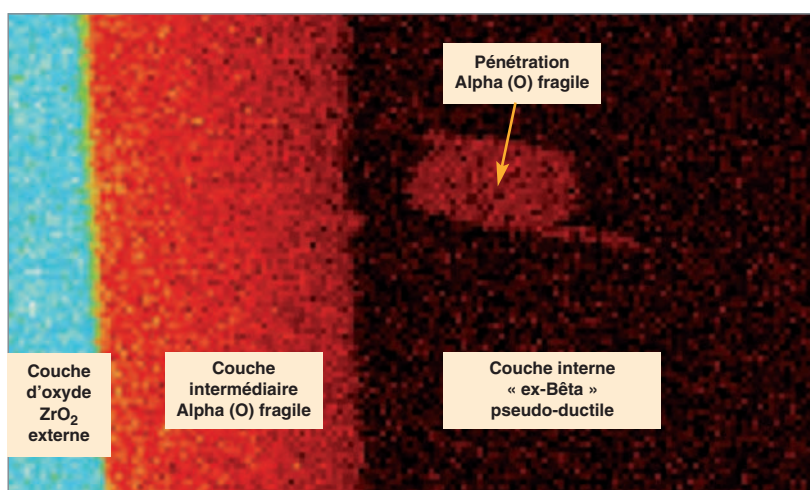


Fig. 59. Cartographie de l'oxygène dans l'épaisseur d'une gaine oxydée à haute température obtenue à la microsonde nucléaire – pas d'analyse = 2µm

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

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 :

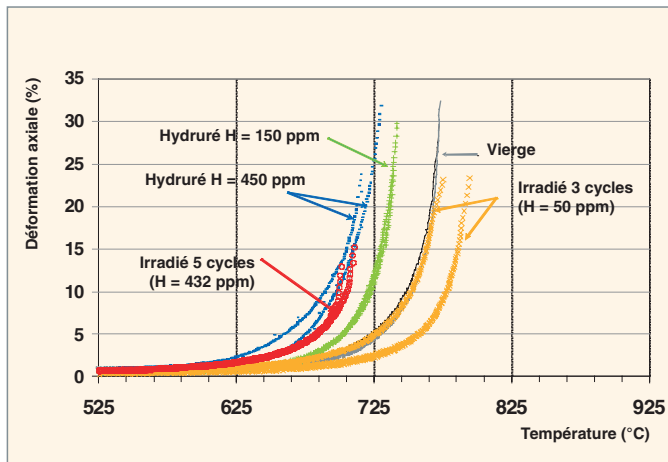


Fig. 60. Fluage du Zy-4 préhydruré et/ou irradié lors d'une rampe à 100°C/s sous chargement uni-axial de 80MPa [5].

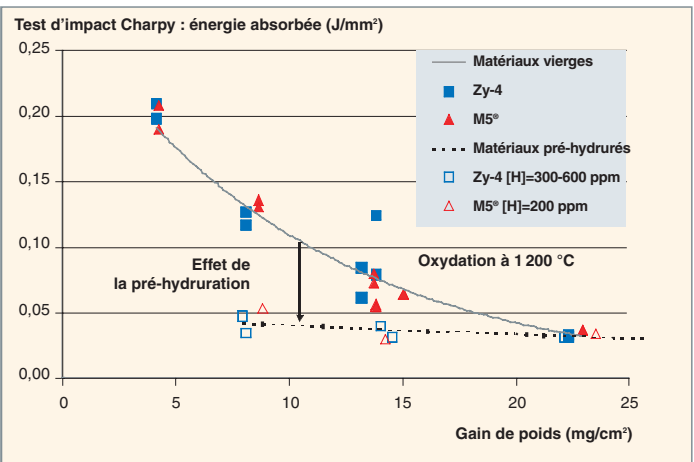


Fig. 61. Essais post-oxydation-trempe - Évolution de l'énergie à rupture en fonction du taux d'oxydation HT – influence d'une pré-hydruration [5].

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. PONTILLO, M.-P. FERROUD-PLATTET, D. PARRAT *et al.*, « *Experimental and theoretical investigation of fission gas release from UO<sub>2</sub> 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<sup>®</sup> (Zr-NbO) alloys after oxidation at 1100 °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<sup>®</sup> (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<sup>®</sup> 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 fission<sup>1</sup>. 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

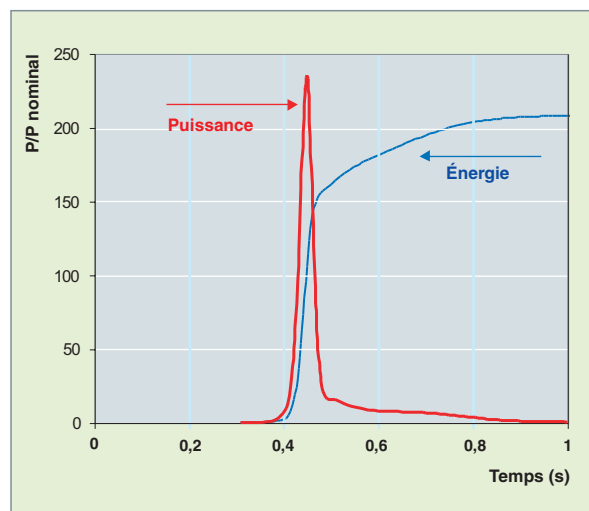


Fig. 62. Évolution de la puissance et de l'énergie injectée lors d'un accident de réactivité en fonction du temps.

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  $\text{UO}_2$  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<sup>®</sup>) 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 de 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

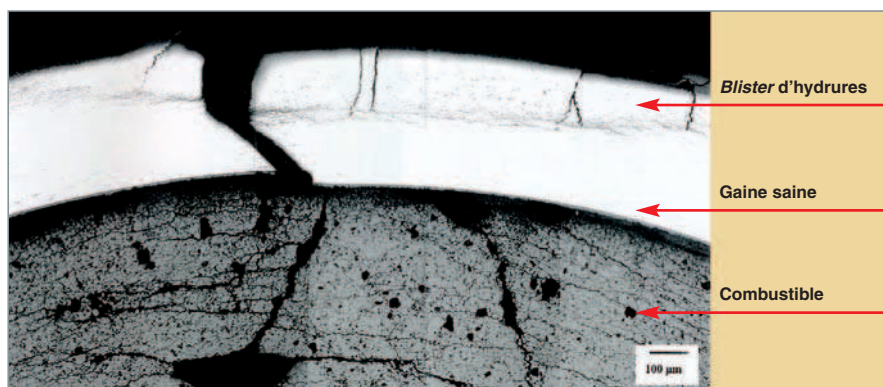


Fig. 63. Coupe métallographique du crayon REP Na 8 après essai CABRI, illustrant la présence d'un « blister » d'hydrure en périphérie de la gaine avec amorce de rupture fragile et faciès ductile à l'intérieur.

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<sup>®</sup>, 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 suppression 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.



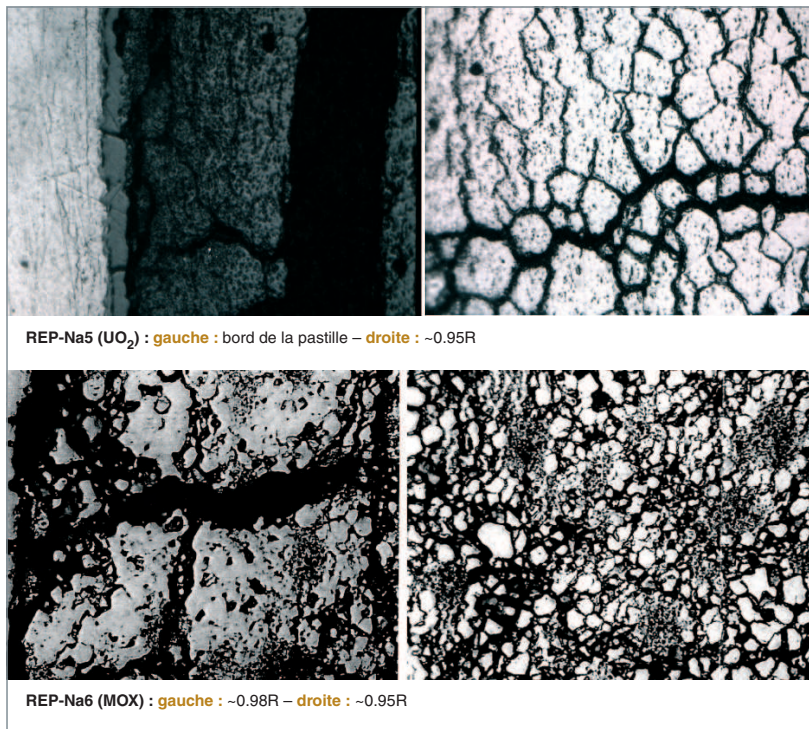


Fig. 64. Fragmentation du combustible avec rupture et dé-cohésion des joints de grains consécutive à la forte pressurisation due aux gaz de fission, lors du transitoire.

### ► 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  $3\,000\text{ °C}$  ; 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 ;

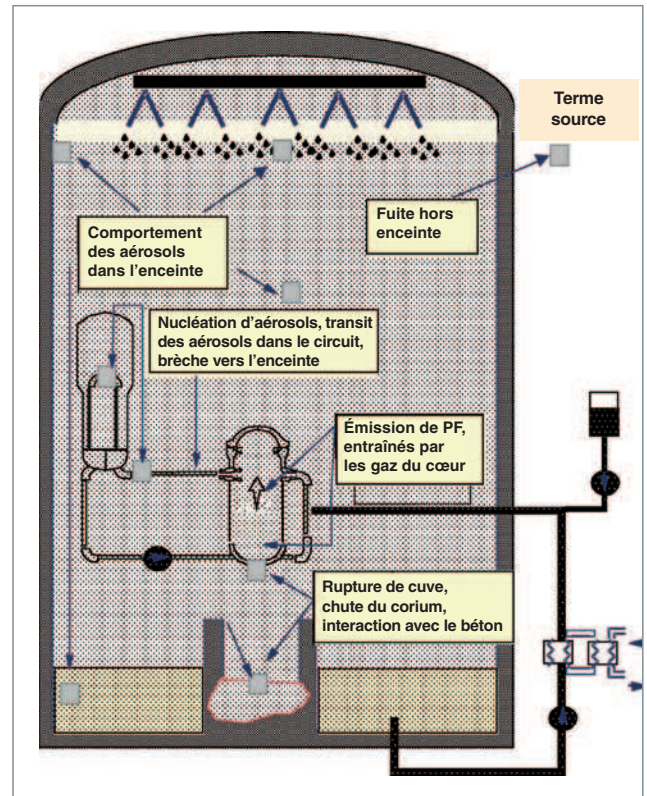


Fig. 65. Faits et événements en jeu, lors d'un accident grave.

- 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'iode 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  $UO_2-ZrO_2$  a entièrement fondu et occupe toute la partie interne du creuset support en thoria.

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-

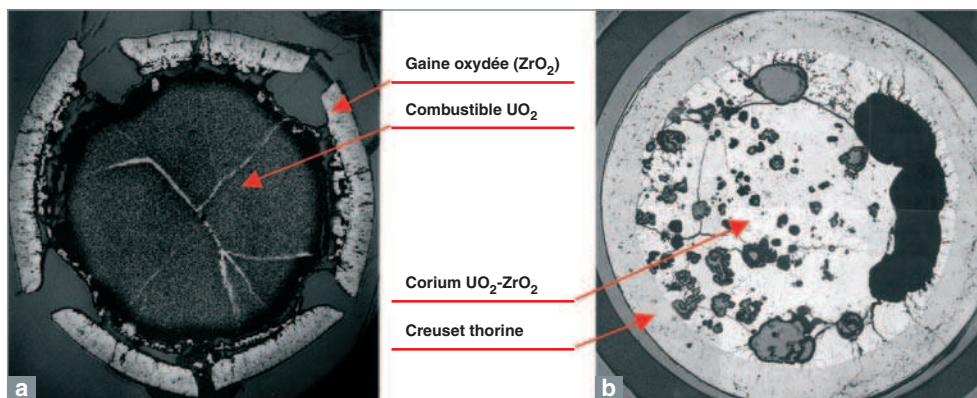


Fig. 66. Essais Vercors.  
a : coupe d'un crayon combustible montrant des amorces de fusion.  
b : le corium  $UO_2-ZrO_2$ .

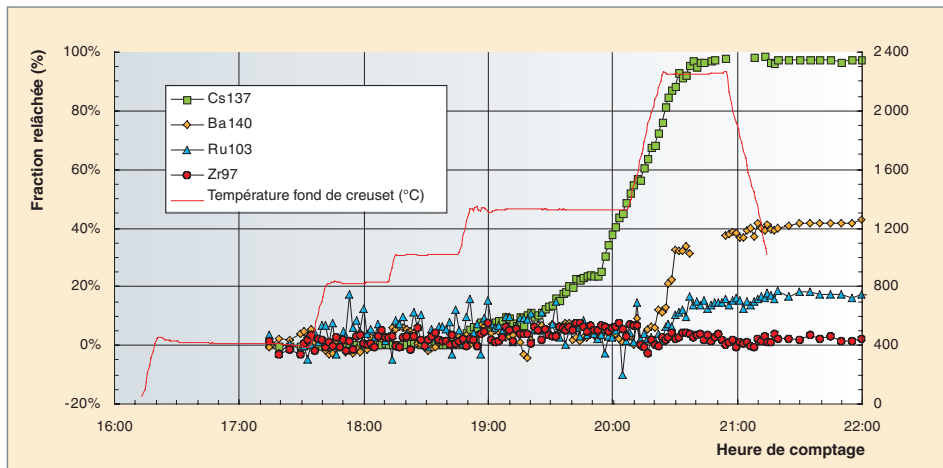


Fig. 67. Illustration des différences de volatilité entre les divers produits de fission (essais VERCORS).

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'enclaustrage 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 m<sup>3</sup> simulant l'enclaustrage 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 (UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>) pour simuler la phase finale d'un accident grave (absence des parties simulant le circuit primaire et l'enclaustrage) ;
- FPT3 a été réalisé à l'automne 2004 dans des conditions similaires à celles de FPT2, mais avec un crayon absorbant en B<sub>4</sub>C et un puisard acide évaporant, conditions favorables à un accroissement significatif d'iode gazeux dans la phase atmosphérique de l'enclaustrage (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 B<sub>4</sub>C).

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

**P**our 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 ( $BU_{m\text{-}fd\text{c}}$ ) défini par :

$$BU_{m\text{-}fd\text{c}} = n \text{ DBU}_c,$$

où  $\text{DBU}_c$  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

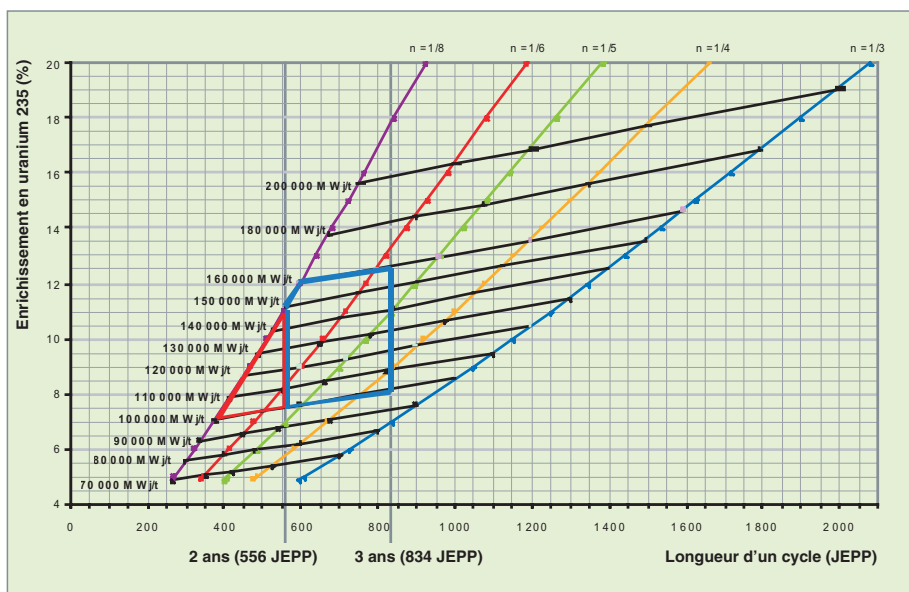


Fig. 68. Relation entre l'enrichissement, le taux de combustion, la longueur du cycle et le fractionnement du cœur pour des très hauts taux de combustion :

- 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 ;



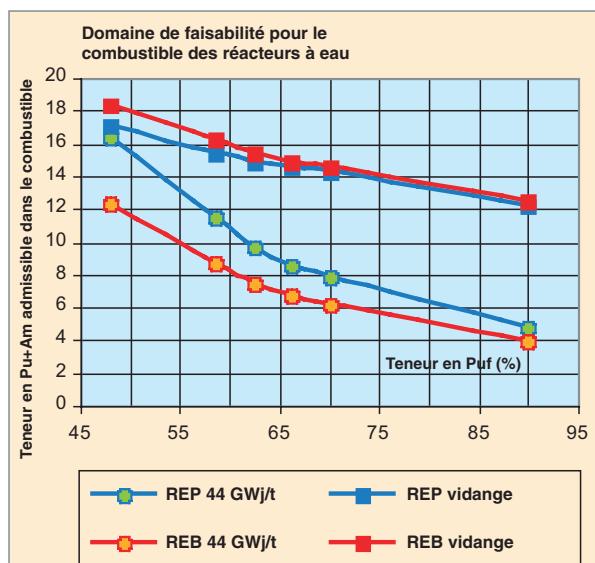


Fig. 69. Lors du recyclage du plutonium dans les REP et REB, la teneur en plutonium du combustible doit être maintenue entre des limites imposées par un taux de combustion minimal à atteindre et par un coefficient de vidange négatif. Ces limites varient en fonction de la qualité du plutonium utilisé, 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 à l'extérieur 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.

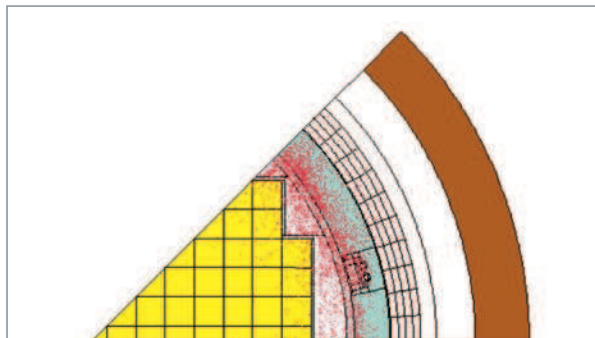


Fig. 70. Fluence cuve, le maillage pour la modélisation du transport des neutrons par le code TRIPOLI 4.

### 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.

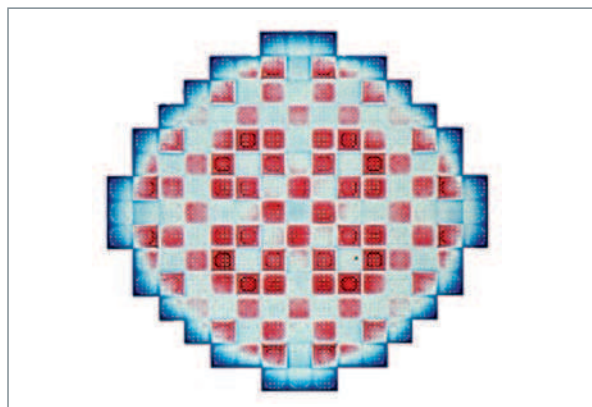


Fig. 71. Distribution de puissance calculée pour un réacteur recyclant du plutonium.

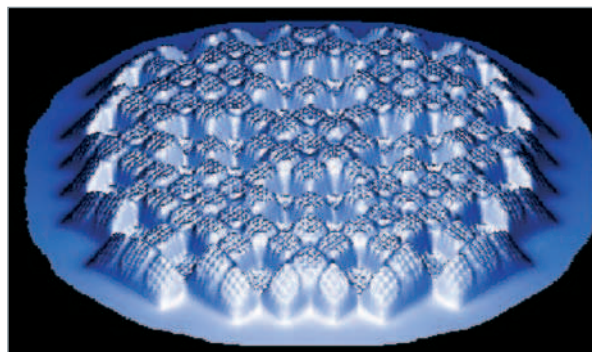


Fig. 72. Distribution du flux des neutrons thermiques dans un cœur chargé avec des assemblages MOX.

### 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	GARANÇE
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.

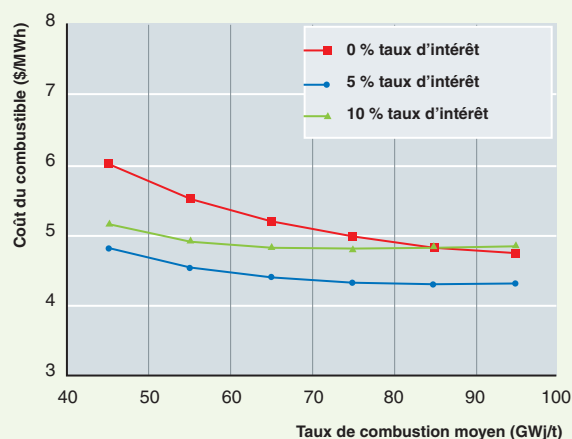


Fig. 73. Le coût du combustible en fonction du taux de combustion, évalué par l'OCDE/AEN [1]. Ce coût dépend beaucoup des hypothèses retenues. Pour plus de détails, se reporter à la référence [1].

#### 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% MOX 8,6 %	1/4 1/4	12 mois, 48 GWj/t 12 mois, 48 GWj/t	Parité MOX
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 ( $\alpha, \beta^-, \beta^+$ ) 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\***.

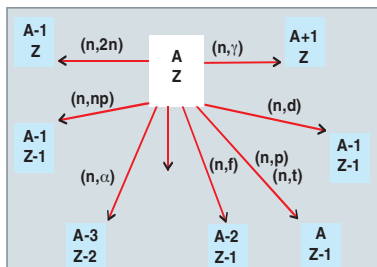


Fig. 74. Les principales réactions nucléaires induites par des neutrons sur un noyau de masse A et de numéro atomique Z.

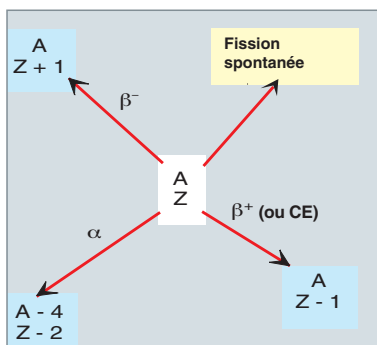


Fig. 75. Les principaux types de désintégration radioactive susceptibles d'affecter un noyau.

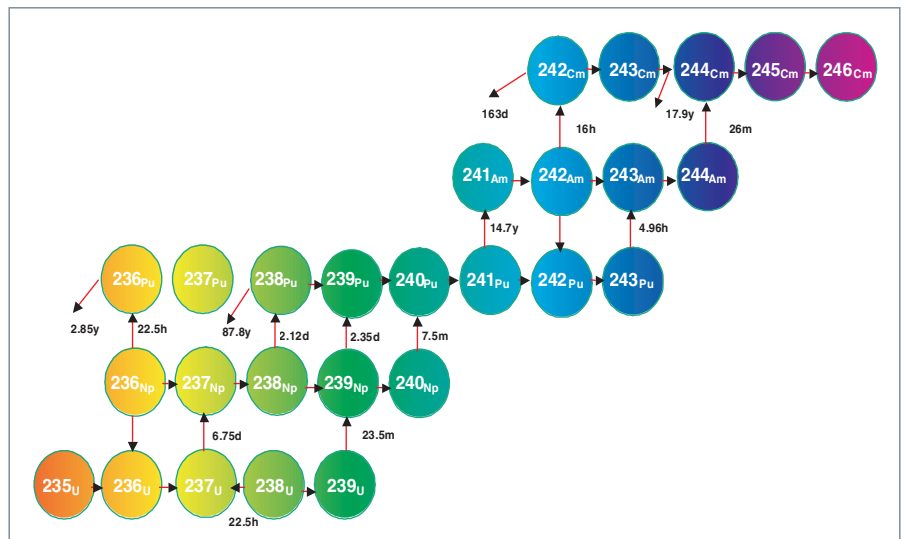


Fig. 76. La chaîne de filiation des actinides susceptibles de se former dans le cœur d'un réacteur.

L'évolution de la population de chaque radionucléide est régie par une équation différentielle dont la forme générale est la suivante ( $N$  : concentration,  $\sigma$  : section efficace,  $\lambda$  :  $\text{Log } 2$  / période,  $\gamma$  : rendements de fission) :

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

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.

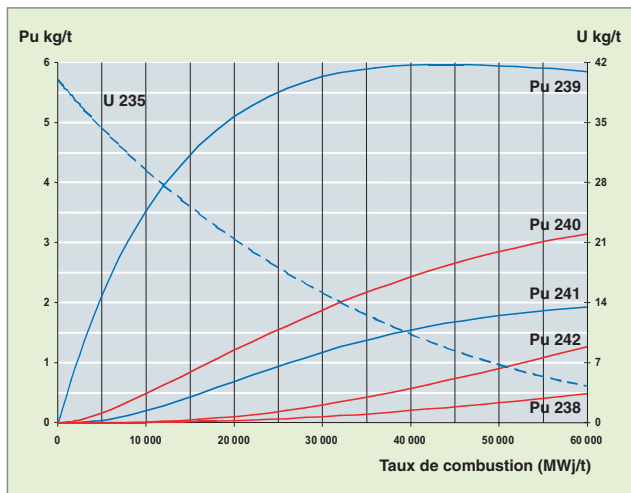


Fig. 77. La quantité d'isotopes du plutonium qui se forment dans le cœur d'un réacteur dépend du taux de combustion.

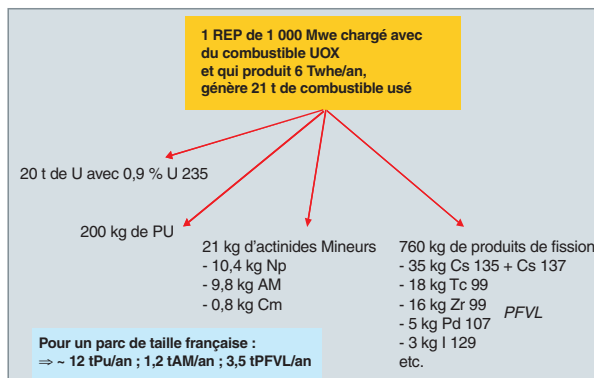


Fig. 78. Quantités d'actinides et de produits de fission formés lors de l'irradiation de combustible UOX dans un réacteur à eau.

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.

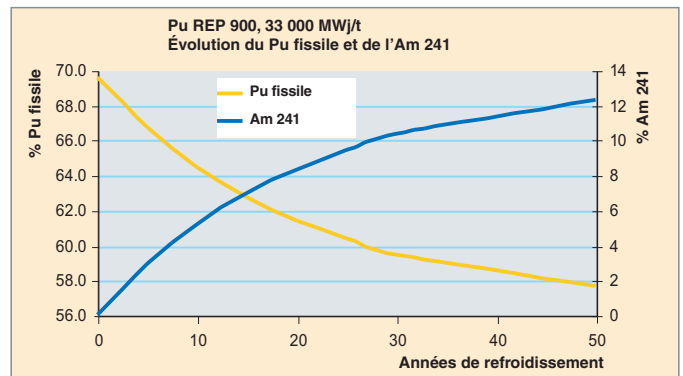


Fig. 79. La production d'américium 241 par désintégration de plutonium 241 contribue à dégrader la qualité isotopique du plutonium formé en réacteur, c'est-à-dire la proportion d'isotopes fissiles qu'il contient.

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  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$  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.

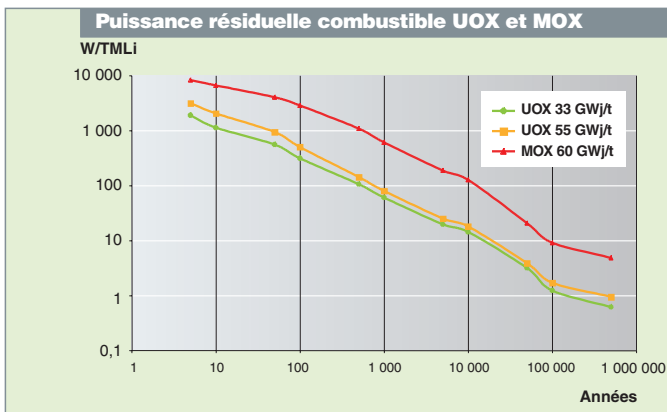


Fig. 80. La puissance résiduelle dégagée par le combustible utilisé (ici exprimée en Watts par tonne de métal lourd initial) décroît en fonction du temps. Cette puissance étant due à la décroissance des radionucléides contenus dans le combustible, celle-ci dépend de la quantité d'actinides et de produits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

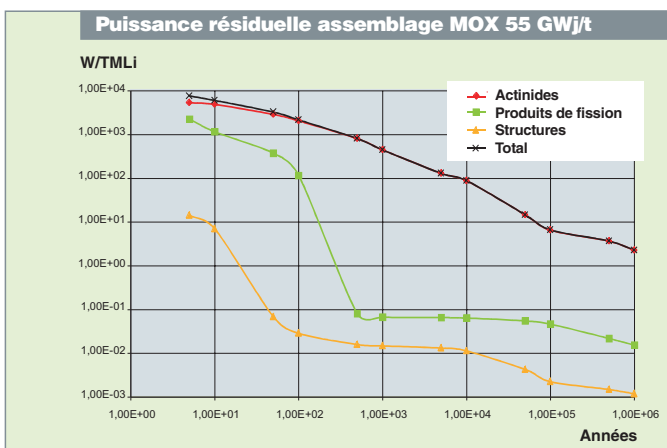


Fig. 81. La puissance résiduelle dégagée par un assemblage MOX utilisé est dominée par la contribution des actinides.

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).

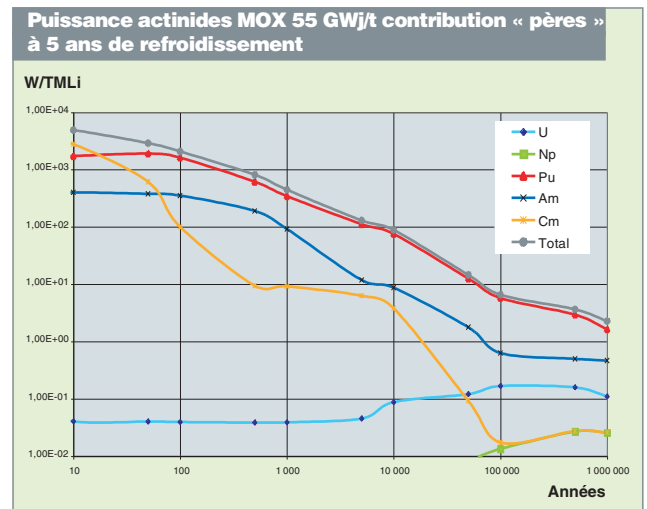


Fig. 82 La contribution des différents actinides à la puissance résiduelle d'un combustible MOX utilisé, irradié à 55 GWj/t et laissé à refroidir pendant cinq ans.

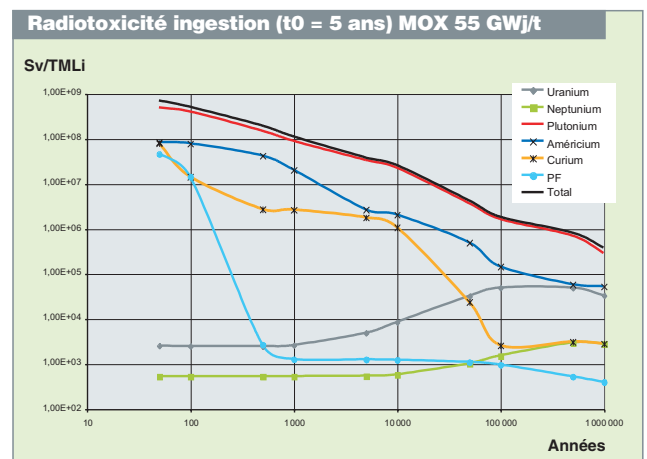


Fig. 83. La radiotoxicité potentielle d'un combustible MOX utilisé, en fonction du temps.

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) :

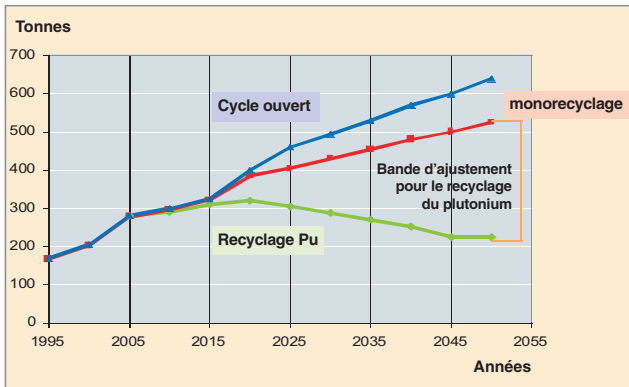


Fig. 84. La quantité totale de plutonium produite par le parc nucléaire français, selon le mode de gestion du combustible.

- Un recyclage du plutonium (monorecyclage) en REP permettait de réduire l'inventaire en plutonium total ;
- le recyclage multiple du plutonium (stratégie non retenue à ce jour) pouvait 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*

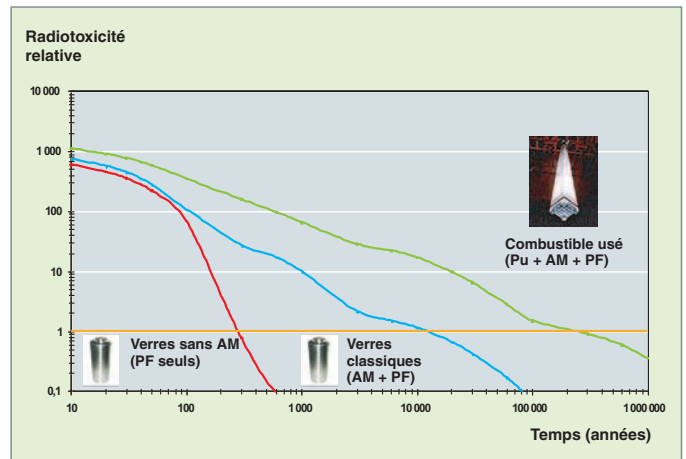


Fig. 85. La décroissance de la radiotoxicité relative du combustible utilisé et des déchets vitrifiés en fonction du temps. La radiotoxicité est estimée ici par rapport à celle de l'uranium initial (ligne orange).

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  $\mu\text{m}$ ) 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  $\mu\text{m}$  d'épaisseur d'oxyde) et interne sous l'influence du combustible (~5-10  $\mu\text{m}$  d'épaisseur d'oxyde dans le Zircaloy-4).

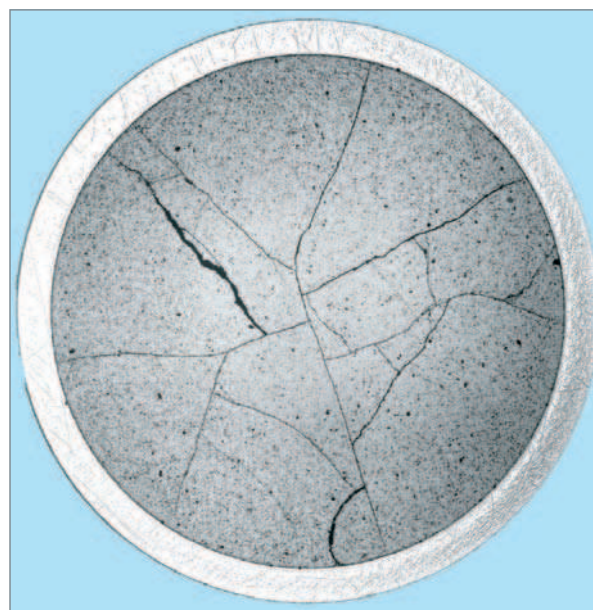


Fig. 86. Micrographie radiale d'un combustible nucléaire usé (microscopie optique) mettant en évidence l'existence de fractures radiales apparues lors de l'irradiation, sous l'effet des gradients de température.

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**\*

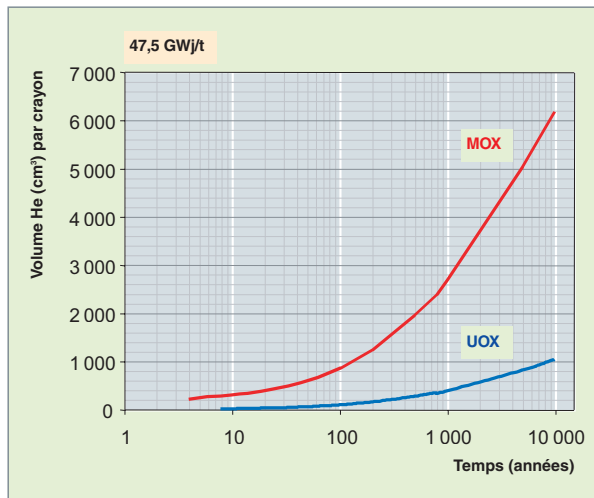


Fig. 87. Évolution en fonction du temps du volume d'hélium produit (dans les conditions normales de température et de pression) par des combustibles UOX et MOX ayant un taux de combustion de 47 GWj/t.

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)O<sub>2</sub> 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 parcelaires 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

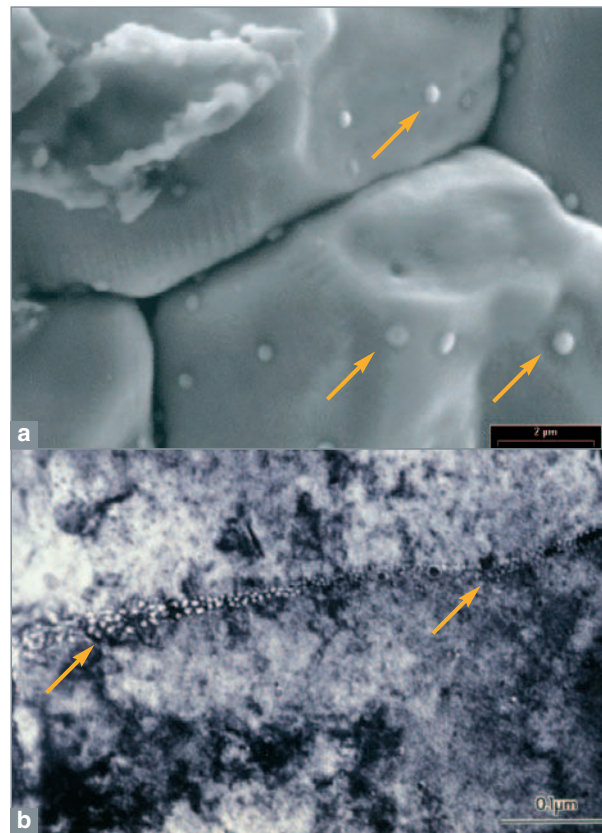


Fig. 88 (a) Micrographie d'un joint de grain après irradiation mettant en évidence la présence de précipités solides à cette interface et (b) micrographie en microscopie électronique à transmission mettant en évidence la présence de nombreuses micro-bulles aux joints de grains [1].

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.

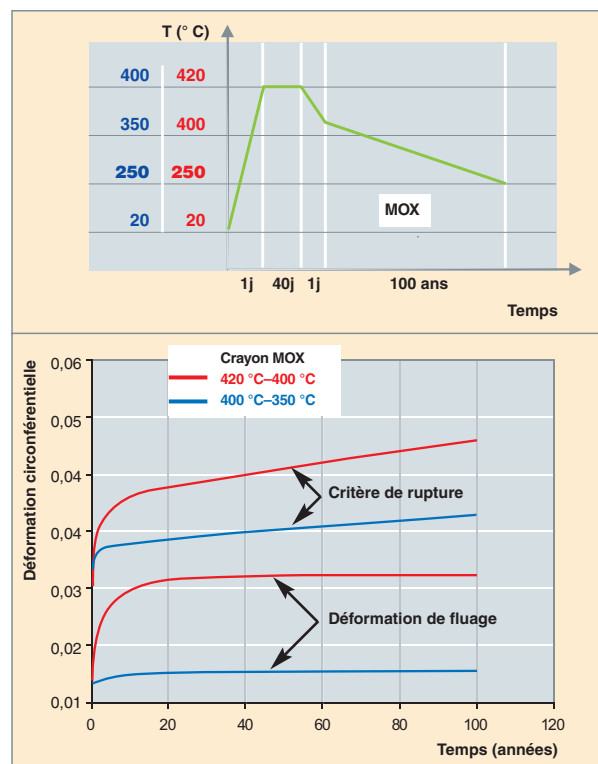


Fig. 89. Évaluation de la déformation et des marges à la rupture pour un crayon MOX en entreposage en supposant un relâchement initial de gaz de fission très pénalisant de 18 % (mais pas de relâchement additionnel).

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 utilisé, 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	Immédiatement après l'irradiation	Fraction labile (%)		
		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<sub>2</sub> est relativement stable en milieu géologique profond, du fait du caractère réducteur du milieu (solubilité extrêmement faible ~10<sup>-8</sup> mol.L<sup>-1</sup>). Cependant, la radioactivité résiduelle d'un combustible utilisé (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

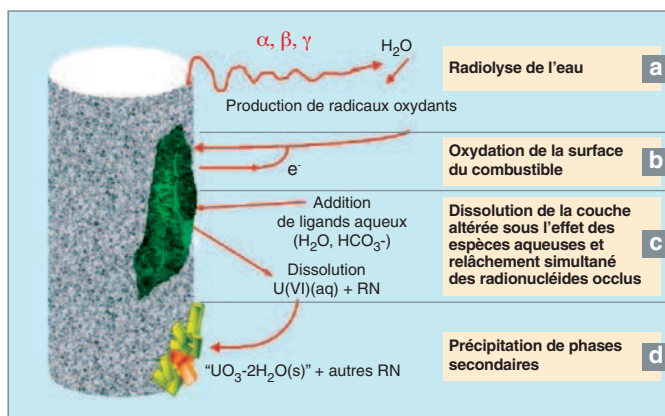


Fig. 90. Mécanismes génériques d'altération d'un combustible nucléaire utilisé en présence d'eau : (a) radiolyse de l'eau sous l'effet des rayonnements  $\alpha$   $\beta$  ou  $\gamma$ , (b) oxydation de la surface du combustible et transformation de U(IV) en U(VI), (c) dissolution de la couche altérée 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 UO<sub>2</sub> 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' $\text{UO}_2$  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-

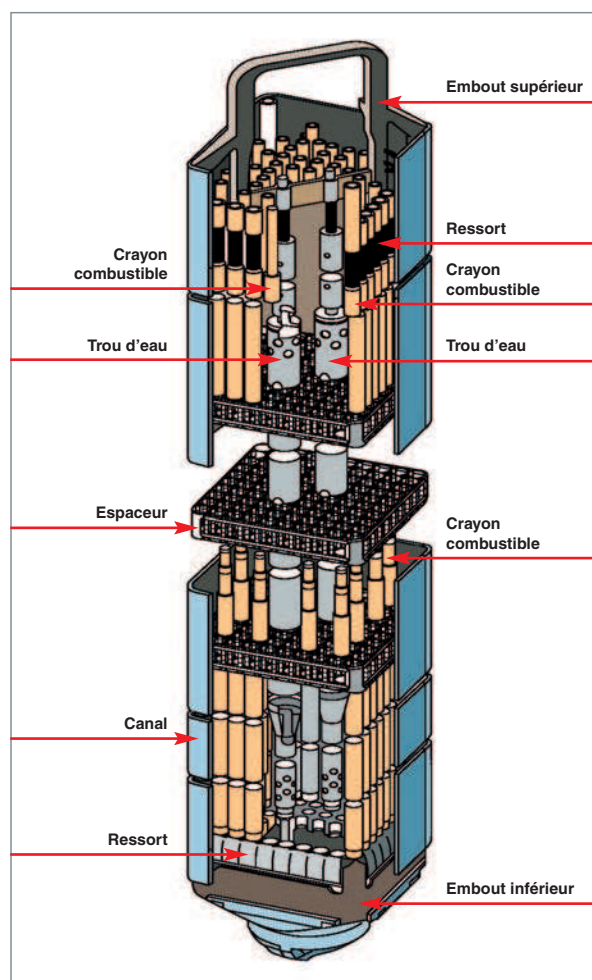


Fig. 91. Assemblage combustible pour réacteur à eau bouillante.

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  $\text{B}_4\text{C}$  se fait par le bas.

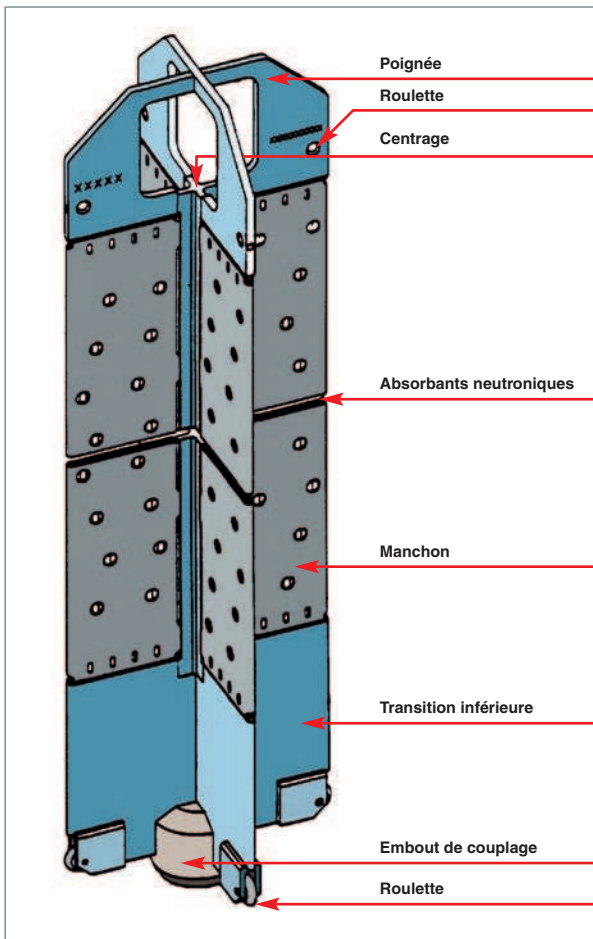


Fig. 92. Croix de contrôle pour réacteur à eau bouillante.

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 **épithermique\***. 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 MARSAL**,  
Département d'étude des réacteurs

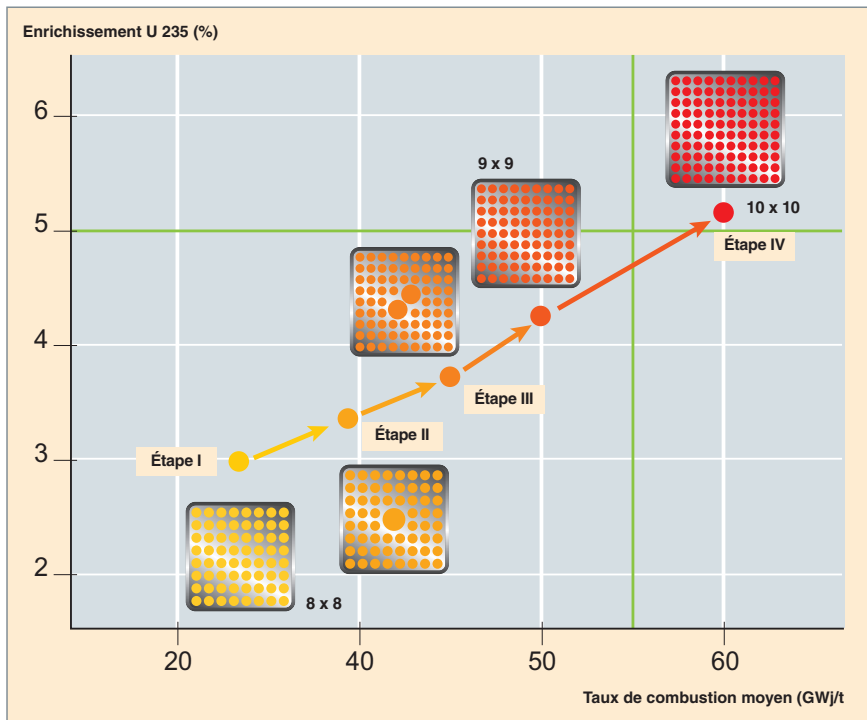


Fig. 93. L'amélioration des performances du combustible des réacteurs à eau bouillante.