

LA FORMATION DE BULLES DE GAZ DE FISSION DANS LE COMBUSTIBLE OXYDE

Ce chapitre présente, tout d'abord, le contexte de l'étude. Des notions générales liées à la réaction de fission nucléaire et au fonctionnement d'un Réacteur à Eau Pressurisée (REP) sont mentionnées. Ensuite, les mécanismes de formation et grossissement des bulles de gaz de fission sont présentés. Enfin, une description des bulles observées est donnée, en fonctionnement nominal, lors de transitoires de puissance et en fonctionnement accidentel.

1. LE CONTEXTE INDUSTRIEL

1.1. Le fonctionnement d'un Réacteur à Eau Pressurisée (REP)

Un réacteur nucléaire permet de produire une réaction de fission en chaîne et d'en contrôler l'intensité. Quatre constituants principaux sont nécessaires :

- un combustible dans lequel se produit la fission et qui est, dans le cas des REP, du dioxyde d'uranium ou de l'oxyde mixte uranium-plutonium (MOX) ;
- un fluide caloporteur (eau), qui transporte la chaleur hors du cœur du réacteur pour ensuite actionner une turbine (turboalternateur) permettant la production d'électricité ;
- un modérateur (eau) qui permet de ralentir les neutrons afin de favoriser la réaction en chaîne ;
- un moyen de contrôle de la réaction en chaîne. Il en existe trois types principaux :
 - des poisons neutroniques solides ajoutés à l' UO_2 , comme le gadolinium ;
 - des barres de commande constituées de matériaux absorbant les neutrons (AIC, B_4C) que l'on fait plus ou moins rentrer dans le cœur du réacteur ;
 - des corps dissous dans l'eau dont on peut faire varier la concentration au cours du temps (par exemple du bore sous forme d'acide borique).

Le fonctionnement général d'une centrale est décrit par la Figure 1.

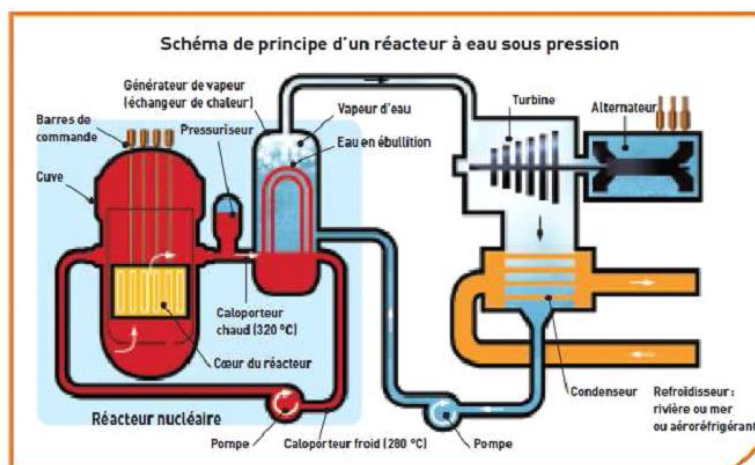


Figure 1 : Schéma de principe d'un réacteur à eau sous pression [1]

L'énergie libérée par les fissions dans le combustible est récupérée sous forme de chaleur, dans le cœur du réacteur. L'eau sous pression, qui joue le rôle de caloporteur, évacue cette chaleur à travers le circuit primaire vers les générateurs de vapeur (échangeurs), puis vers les turbines via un circuit secondaire. Les alternateurs couplés aux turbines produisent finalement l'électricité.

1.2. Le combustible d'un REP

Dans les REP, le combustible est soit le dioxyde d'uranium, soit l'oxyde mixte MOX (pour Mixed Oxides) (U,Pu)O₂.

Les pastilles d'UO₂ sont élaborées par métallurgie des poudres à partir d'une poudre d'oxyde d'uranium enrichi. La poudre a une surface spécifique d'environ 2 m².g⁻¹, suffisamment basse pour lui conférer une excellente stabilité (peu d'évolution dans le temps du rapport O/U), et assez élevée pour lui conférer une bonne frittabilité [2].

La structure cristallographique de l'UO₂ stoechiométrique est de type fluorite, de groupe d'espace Fm3m, (Figure 2).

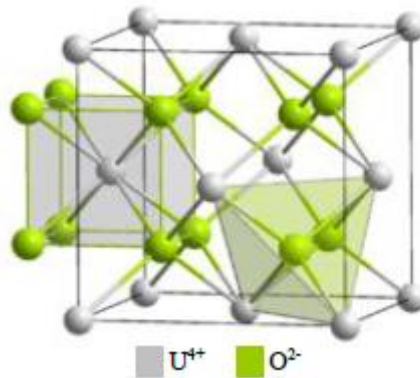


Figure 2 : Structure cristallographique type fluorite du dioxyde d'uranium.

La maille élémentaire d'UO₂ est une maille cubique face centrée d'uranium dans laquelle quatre atomes d'oxygène occupent les sites tétraédriques.

Les liaisons atomiques entre les atomes d'uranium U et d'oxygène O sont de natures partiellement covalentes et partiellement ioniques. D'après le critère d'ionicté basé sur la différence entre l'électronégativité des deux atomes ($X_O = 3,5$ et $X_U = 1,5$) [4], cette liaison serait plus précisément à 63 % ionique.

Pour l'UO₂ stoechiométrique, le paramètre de maille est de 5,470±0,001 [5] à température ambiante et sa température de fusion de 2847±30 °C [6].

Les pastilles de combustible MOX, dans le cadre du recyclage du plutonium récupéré au retraitement des pastilles UO₂ irradiées, sont constituées d'un mélange de dioxyde d'uranium et de dioxyde de plutonium (PuO₂) jusqu'à des teneurs moyennes en plutonium (pastille) de 12 % en masse. Ce combustible se nomme le combustible MOX (acronyme anglais : Mixed OXyde). Le

plutonium, dans ce type de combustible, provient du retraitement des pastilles UO_2 , irradiées 3 à 4 cycles. Pour comprendre l'origine de ce plutonium (élément artificiel), il faut savoir que les pastilles de dioxyde d'uranium irradiées sont constituées en majorité par l'isotope $^{238}_{92}\text{U}$ qui est fertile. Ainsi sous irradiation, par capture neutronique dans le domaine épithermique et décroissance β^- , cet isotope de l'uranium se transforme en $^{239}_{94}\text{Pu}$, élément qui est fissile et donc source d'énergie nucléaire comme l'isotope $^{235}_{92}\text{U}$. Ainsi, au terme des quatre cycles d'irradiation, dans les pastilles de dioxyde d'uranium, l'isotope $^{235}_{92}\text{U}$ a été consommé en quasi-totalité, tandis que le $^{239}_{94}\text{Pu}$ formé n'a été que partiellement consommé. Il est donc intéressant de retraiter ces pastilles de dioxyde d'uranium pour récupérer cet isotope du plutonium. D'autres isotopes du plutonium, créés sous irradiation, sont également intéressants, comme l'isotope $^{241}_{94}\text{Pu}$ (isotope également fissile dans un REP).

Dans les deux cas (UO_2 et MOX), la poudre est pressée sous forme de pastilles. Les pastilles sont frittées (diamètre $\sim 8,2$ mm, hauteur ~ 13 mm : cf. Figure 3), avec un évidement hémisphérique à chaque extrémité, destiné à compenser l'excès de dilatation du centre de la pastille par rapport à la périphérie, sous irradiation.

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 accommoder une partie du gonflement de la pastille sous irradiation. Les pastilles crues sont généralement frittées pendant 4 h à 1700°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 micromètres près. Les pastilles sont aussi chanfreinées pour faciliter leur introduction dans la gaine.

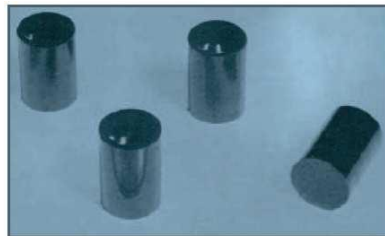


Figure 3 : Pastilles combustibles [6]

Les pastilles sont empilées dans une gaine métallique en alliage de zirconium destinée à confiner les produits de fission 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 d'environ 9,5 mm (Figure 4). Les crayons sont regroupés en assemblages (chacun en comprenant 264, dans le cas des REP français).

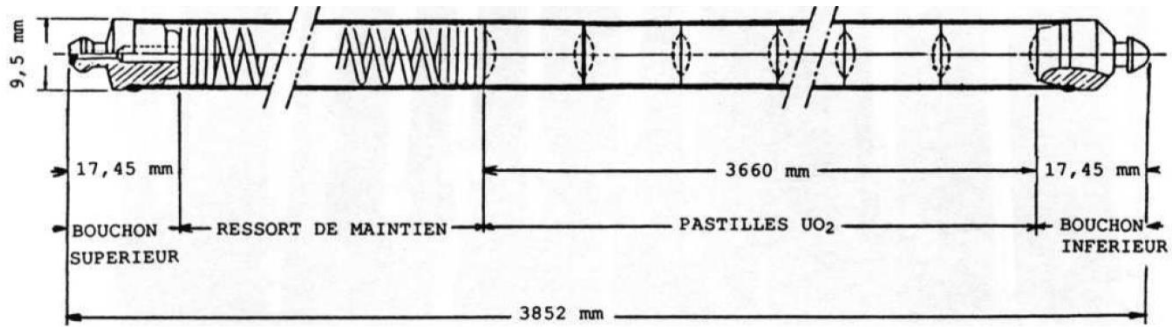


Figure 4 : Dimensions caractéristiques d'un crayon combustible utilisé dans les REP [6]

Les assemblages restent, en moyenne, entre trois et quatre ans dans un réacteur. Le renouvellement du combustible usé s'effectue par rechargement périodique (tous les 12 à 24 mois) d'une fraction du cœur du réacteur (entre 20 et 50 % du nombre total d'assemblages), selon le type de gestion et le niveau de performance du combustible.

1.3. Le fonctionnement nominal d'un REP et situations incidentelles

1.3.1. Le fonctionnement nominal

Les crayons combustibles fonctionnent, en régime nominal, à des puissances linéiques moyennes (flux thermique transféré par un crayon moyen du cœur par unité de longueur) comprises entre 150 et 250 W.cm⁻¹. Un exemple d'évolution de la puissance linéique moyenne d'un crayon UO₂ qui a subi une irradiation de 2 cycles à environ 220 W.cm⁻¹ est présenté sur la Figure 5. Sous l'effet de l'épuisement du combustible, la puissance moyenne tend à diminuer au cours du temps.

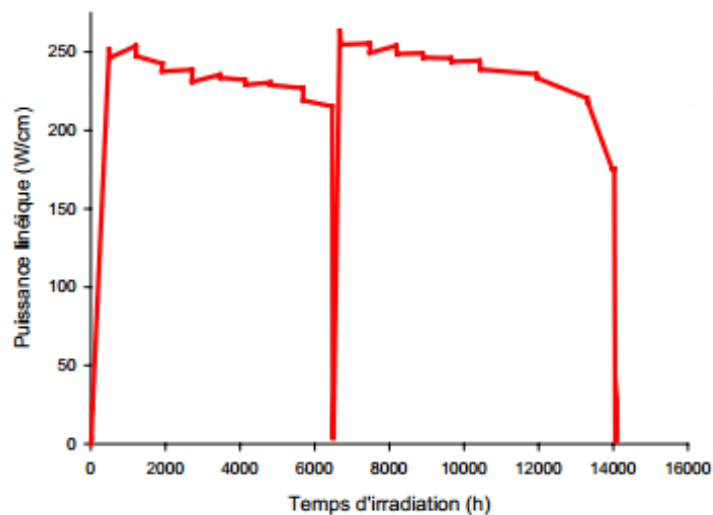


Figure 5 : Historique de puissance d'un crayon: deux cycles de base.

La période entre le chargement et le déchargement du combustible d'un réacteur est appelée un cycle. L'avancement de l'irradiation est évaluée par le taux de combustion du combustible, qui correspond au pourcentage d'atomes lourds ayant subi la fission (% FIMA ou at%). Couramment utilisé pour évaluer la quantité d'énergie thermique par unité de masse de matière fissile, il s'exprime aussi en mégawatts.jour par tonne de métal lourd initial (MWj/t_{ML} ou MWj/t_U pour l'UO₂).

Lors de la première montée en puissance, le centre de la pastille se dilate davantage, étant à une température plus élevée que la périphérie (Figure 6). La pastille combustible MOX ou UO_2 se fracture en 6 ou 8 fragments radiaux.

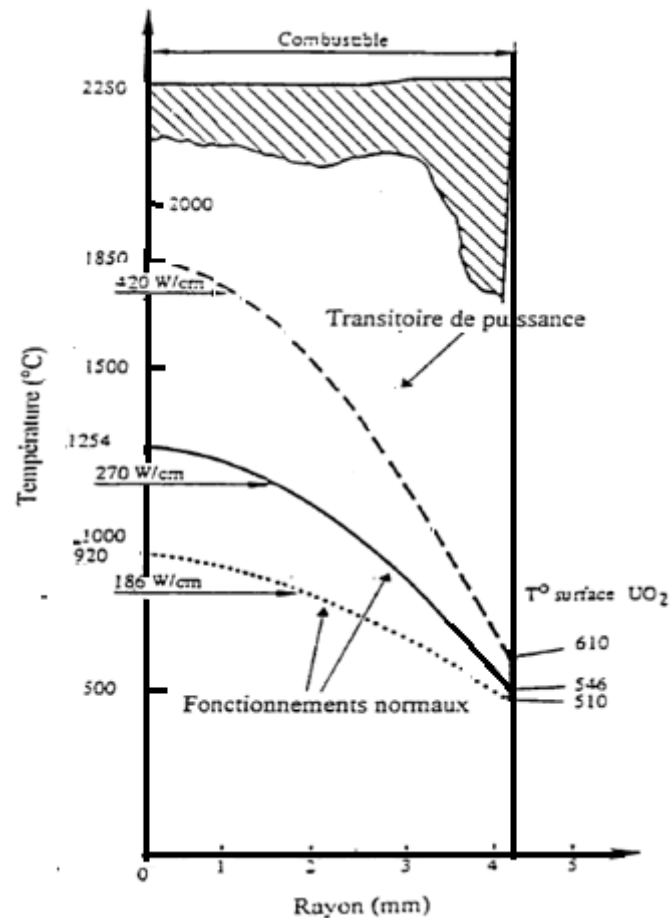


Figure 6 : Distribution radiale de la température dans une pastille combustible [7].

En fonctionnement nominal, la pastille a en son centre, une température voisine de 1000°C alors que sa périphérie est à une température de l'ordre de 500 °C.

Le centre de la pastille se retrouve sollicité en compression tandis que la périphérie est sollicitée en traction. La contrainte radiale est nulle en périphérie puisque la pastille est libre de se dilater (jusqu'à la fermeture du jeu entre la pastille et la gaine).

1.3.2. Les transitoires incidentels et accidentels

Un transitoire de puissance se traduit par une augmentation importante de la puissance et donc de la température de la pastille. Les transitoires les plus pénalisants pour le maintien de l'intégrité de la gaine sont les transitoires rapides.

1.3.2.1. Fonctionnement incidentel en suivi de charge

Lors d'essais expérimentaux, ce fonctionnement consiste en une augmentation plus ou moins rapide de la puissance. Cette hausse permet l'étude du comportement des pastilles en situation incidentelle et va impliquer une augmentation de la température moyenne de la pastille qui va donc se dilater. La Figure 7 montre une rampe jusqu'à 400 W.cm^{-1} conduite en réacteur de recherche. Elle comprend un palier de conditionnement du crayon dont la puissance correspond à la puissance linéique en fin d'irradiation de base et un palier haut à 400 W.cm^{-1} pendant 1 h. En cas de rupture de gaine, la rampe est interrompue.

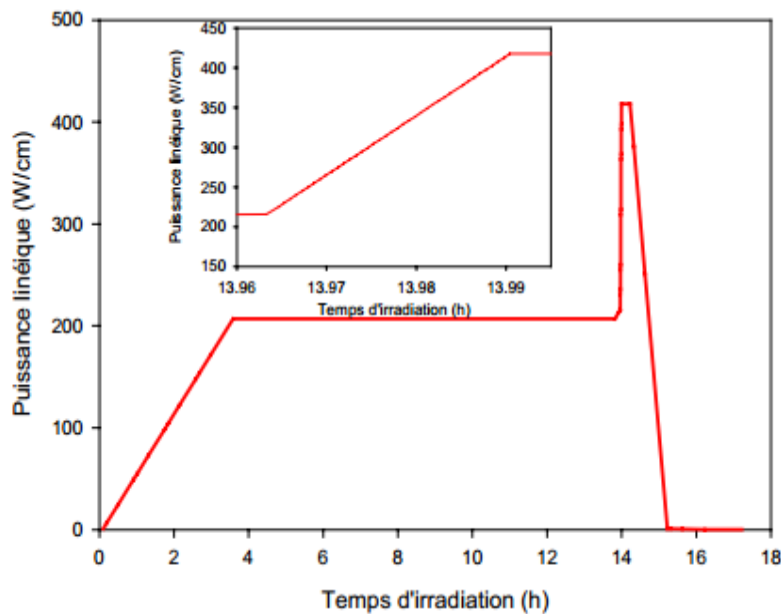


Figure 7 : Représentation schématique d'une rampe de puissance.

Cette augmentation rapide de la puissance influence le champ thermique dans la pastille, toujours refroidie en périphérie à travers la gaine par le fluide caloporteur. Ainsi sur la peau externe de la pastille, la température varie peu passant de 400 à 450 °C, alors que la température centrale du combustible peut passer de 950 à 1850 °C (Figure 6). Les températures élevées vont impliquer un fort relâchement des gaz de fission, qui va faire augmenter la pression interne du crayon.

Dans le but d'évaluer le seuil de rupture du crayon dans ces conditions, ils sont simulés dans des réacteurs expérimentaux, tels que le futur RJH sur le site de Cadarache.

1.3.2.2. L'accident de réactivité (RIA)

Dans un réacteur à eau pressurisée, l'accident de réactivité (RIA) est une évolution incontrôlée de la réaction nucléaire par l'éjection d'une grappe de commande du cœur du réacteur [8]. Sachant qu'une grappe est formée de crayons absorbants les neutrons qui participent à la maîtrise de la réaction nucléaire. L'éjection d'une grappe de commande sur un réacteur à eau sous pression induit un transitoire de puissance extrêmement rapide, avec un dépôt significatif d'énergie dans les crayons combustibles situés au voisinage de la grappe éjectée. L'emballlement local de la réaction nucléaire

pendant quelques dizaines de millisecondes (pulse de puissance) provoque une augmentation très rapide de la température du combustible (Figure 8). Les contre-réactions neutroniques limitent alors le transitoire de puissance avant l'arrêt automatique du réacteur (chute des grappes de commande intactes) qui intervient dans un second temps.

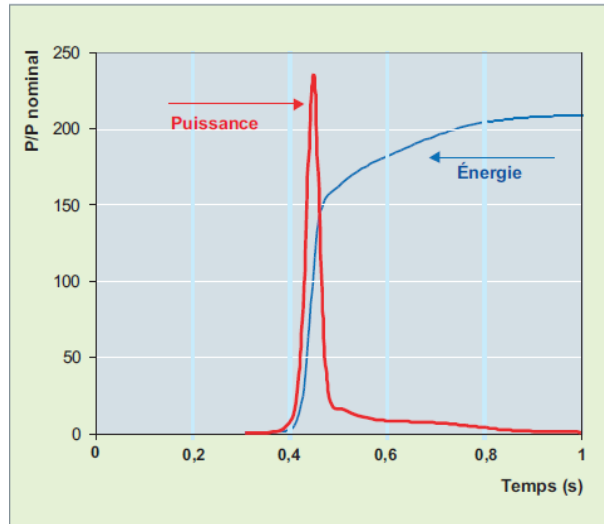


Figure 8 : Exemple de courbes de puissance et énergie lors d'un RIA.

De nombreux tests de simulation de RIA ont été entrepris dans le monde. Au CEA et à l'IRSN, un programme a été dédié à ce type de transitoire, effectué dans un réacteur expérimental, CABRI à Cadarache. La première phase de l'accident s'étend sur quelques dizaines de millisecondes et se caractérise par une forte interaction mécanique entre le combustible et la gaine. Cette interaction est due à l'expansion volumique de l'oxyde induite par l'échauffement quasi adiabatique, ainsi qu'à la pression exercée par les gaz de fission et à l'ouverture des joints de grains. En cas de rupture de gaine lors de cette phase initiale, une dispersion de combustible, sous forme de petits fragments, peut conduire à la vaporisation brutale de l'eau entourant le crayon, avec risque d'explosion vapeur.

La deuxième phase de l'accident, gouvernée par l'évolution thermique du système, s'étend sur quelques secondes jusqu'à une dizaine de secondes. Elle conduit à un fort accroissement de la température de la gaine, avec le risque d'atteindre 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.

1.3.2.3. L'accident de perte de réfrigérant primaire (APRP)

Pour les réacteurs à eau sous pression, l'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP ou LOCA, en anglais : « Loss of Coolant Accident »), résulte de la rupture d'une canalisation principale du circuit primaire. Cette rupture entraîne la perte du refroidissement et donc une homogénéisation des températures. Dans ce schéma accidentel, la rupture d'une branche du circuit primaire, cause en quelques secondes la dépressurisation du circuit primaire avec arrêt immédiat de la réaction en chaîne par chute des barres de sécurité. La puissance dégagée baisse immédiatement. Malgré l'arrêt des réactions de fission induit par le modérateur et la chute des barres de commande, le combustible