

DESCRIPTION DES BULLES DE GAZ DANS DIVERSES SITUATIONS

3.1. En fonctionnement nominal

Suivant la température et la puissance linéique durant les différents cycles d'irradiation, des microstructures différentes se dessinent selon le rayon d'une pastille.

3.1.1. Cas du combustible UO_2

La précipitation des gaz rares dans le dioxyde d'uranium a été observée expérimentalement au travers de caractérisations MET et MEB [15, 28-36]. Les images obtenues grâce à ces techniques permettent de décrire l'évolution de populations de bulles (taille, densité) en fonction des paramètres expérimentaux tels que la température. Les paragraphes qui suivent décrivent les populations de bulles observées sur combustible irradié suivant leur localisation et le taux de combustion. Les observations ont montré une taille de bulle qui varie du nanomètre au micromètre.

Dans un premier temps, les bulles nanométriques observées au MET sont présentées, suivies par les études au MEB, des bulles submicro à micrométriques, en fonction du taux de combustion.

A faible taux de combustion, Cornell et Turnbull [28] ont tout d'abord travaillé sur des disques de dioxyde d'uranium irradiés à 1000 °C entre 3 et 43 MWj/t_U. Les caractérisations MET n'ont pas révélé la présence de bulles sauf près de pores où elles font 2,5 à 3 nm de diamètre

Nogita et Une [15], ont analysé par DRX et par MET deux échantillons d' UO_2 irradiés à un taux de combustion de 23 GWj/t_U de tailles de grains initiales différentes : 16 μm et 43 μm . Des bulles intragranulaires de gaz de fission de diamètre compris entre 6 et 8 nm avec un diamètre moyen de 6,2 nm et une densité $6,9 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ pour le combustible standard et 7,5 nm et $5,3 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ pour le combustible à plus gros grains, ont été observées. A un taux de combustion semblable de 23 GWj/t_U, Kashibe *et al.* [29] ont observé une population monomodale de bulles de diamètre 2,2 nm et de densité $9 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$.

Nogita et Une [30] ont caractérisé, la population de bulles à un taux de combustion de 30 GWj/t_U [31] [32]. La population de bulles est monomodale de diamètre moyen 1 nm en périphérie de pastille, où la température atteint 600°C.

Dans le cas des observations au MEB, Noirot *et al.* [33] ont effectué des examens sur un combustible UO₂ irradié 1 cycle (16,5 GWj/t_U). Au centre, les bulles sont globalement réparties entre 0,1 et 1 µm. En périphérie, la plupart des bulles possèdent des diamètres compris entre 0,1 et 0,7 µm.

A plus fort taux de combustion, Kashibe *et al.* [29] ont travaillé sur des échantillons prélevés en périphérie de pastilles d'UO₂ ayant été irradiés en réacteur expérimental. A 44 GWj/t_U, le diamètre de bulle augmente et passe à 3,9 nm tandis que la densité diminue jusqu'à 7.10^{23} m^{-3} . A partir de ce taux de combustion, une deuxième population de bulles de diamètre plus élevé, entre 20 et 30 nm, apparaît également. Cette population de plus grosses bulles se situe préférentiellement à proximité des joints de grains. Enfin, au burnup élevé de 83 GWj/t_U, la population de petites bulles a un diamètre moyen de 4,7 nm et celle de grandes bulles subsiste. La densité pour les petites bulles est de 4.10^{23} m^{-3} tandis que la densité des grosses bulles est plus faible, de 1.10^{23} m^{-3} .

Ray *et al.* [34] ont caractérisé par MET le comportement des produits de fission solides et gazeux sous de nombreuses conditions à partir d'échantillons d'UO₂ vierges et irradiés à un taux de combustion de 45 GWj/t_U. Le matériau non irradié possède une faible densité de pores facettés intragranulaires de taille comprise entre 50 et 100 nm avec une distribution hétérogène. L'échantillon irradié présente une forte densité de petites bulles de gaz de fission liées à des précipités de produits de fission solides avec une distribution en taille resserrée autour d'un diamètre de 8 nm. La distribution en densité est homogène avec une densité moyenne de $1,2.10^{22} \text{ m}^{-3}$ en périphérie de pastille et $1,9.10^{22} \text{ m}^{-3}$ au centre. De plus grosses bulles de diamètre compris entre 10 et 30 nm sont également présentes mais en plus faible densité. D'après l'auteur, ces dernières sont sans doute des pores présents initialement dans le combustible vierge et qui se sont remplis de gaz de fission.

Nogita et Une [30] ont caractérisé la population de bulles en périphérie de pastille irradiée en moyenne à 49 GWj/t_U et localement à 100 GWj/t_U. Le diamètre moyen des bulles est de 7 nm et leur densité de $5,4.10^{22} \text{ m}^{-3}$.

Cornell et Turnbull [28] ont irradié d'autres disques à 1200 °C. A partir de 60 MWj/t_U, les premières bulles sont observées. A 115 MWj/t_U, la population de bulles a été caractérisée, le diamètre moyen est de 2,5 nm et la densité de 3.10^{23} m^{-3} .

Dans le cas des observations au MEB, Desgranges *et al.* [35] ont observé au MEB un combustible UO₂ irradié 5 cycles (56 GWj/t_U). La porosité globale peut atteindre 4 µm de diamètre. Au centre, les bulles sont majoritairement comprises entre 0,1 et 0,5 µm de diamètre. En périphérie, leur diamètre est compris entre 0,5 et 0,8 µm.

Dans le cas d'un UO₂ irradié 6 cycles (67,5 GWj/t_U) étudié par Noirot *et al.* [36], l'analyse de la porosité globale met en évidence des bulles de diamètre atteignant les 4 µm. Une population de

bulles intragranulaires se trouve majoritairement entre 0 R et 0,3 R (R : rayon de la pastille) (densité $3.10^{18} - 2.10^{18} \text{ m}^{-3}$) et en périphérie de la pastille avec pour la plupart un diamètre compris entre 0,2 et 0,4 μm pouvant atteindre les 2 μm . Des bulles intergranulaires sont observées sur l'ensemble du rayon avec pour la majorité un diamètre compris entre 0,4 et 1 μm et au niveau de la périphérie, des bulles de diamètres compris entre 0,5-0,8 μm . Après une rampe de puissance (407 W.cm^{-1}), il est observé qu'à partir de 0,669 R, une forte précipitation gazeuse intragranulaire et intergranulaire est présente dans l'échantillon. Au centre, les bulles intragranulaires sont extrêmement rares et de larges cavités intergranulaires sont présentes atteignant 3-4 μm de diamètre.

La synthèse des résultats précédents concernant les populations de bulles en fonction du taux de combustion est rassemblée sur la Figure 12.

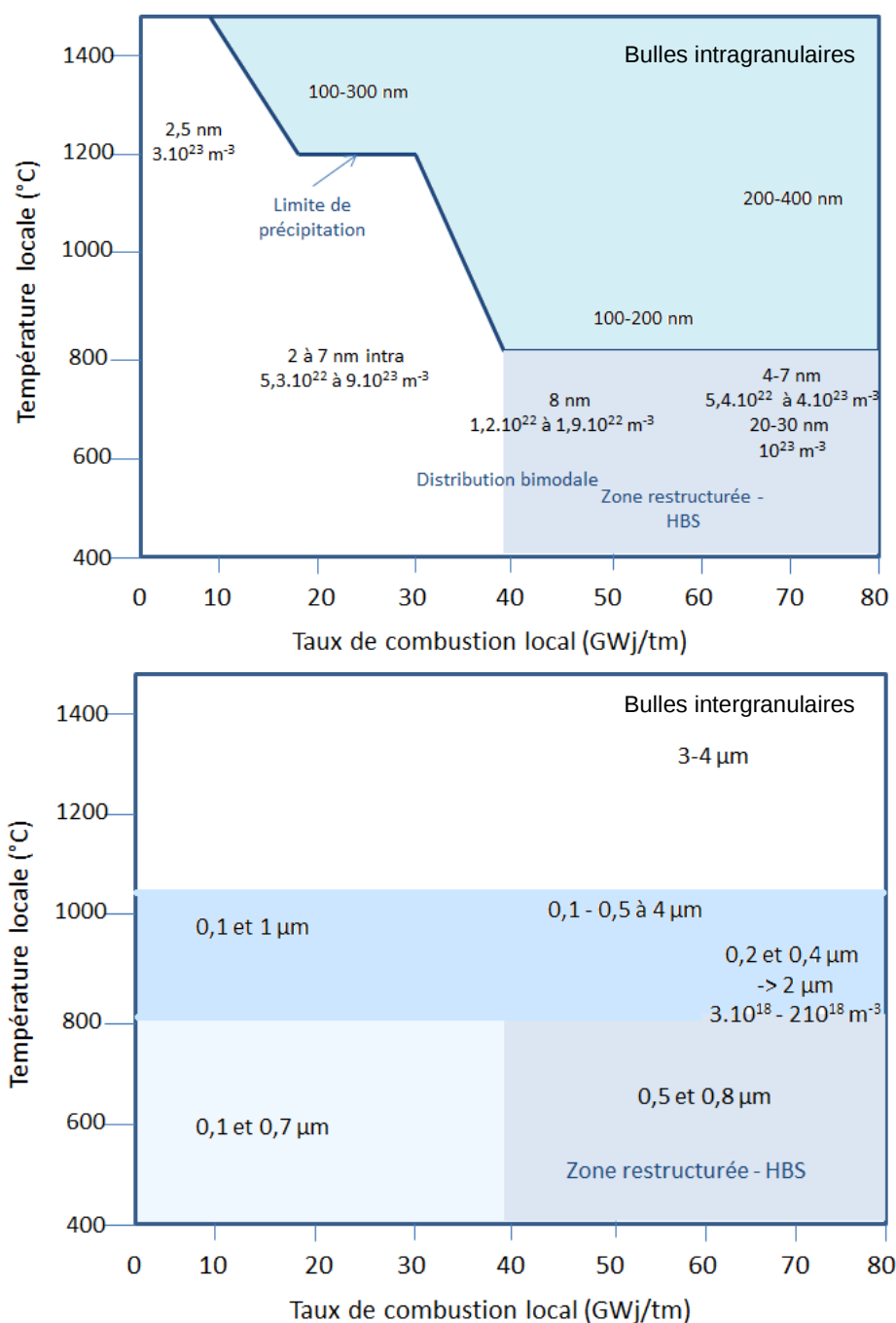


Figure 12 : Caractéristiques des bulles intragranulaires intergranulaires en fonction de la température et du taux de combustion dans des combustibles UO_2 de REP [37].

En conclusion, au cours de l'irradiation, la taille des bulles intra et intergranulaires dans le combustible, augmente avec le taux de combustion et la température. En effet, à partir d'une température entre 600 et 800 °C, la population de bulles, monomodale aux faibles taux de combustion devient bimodale aux taux élevés avec des bulles de l'ordre de la centaine de nanomètre et une population de bulles micrométriques.

La microstructure d'un combustible UO_2 après un fonctionnement nominal est décrite sur la Figure 13. Le combustible illustré possède un taux de combustion supérieur à 40 GWj/tu.

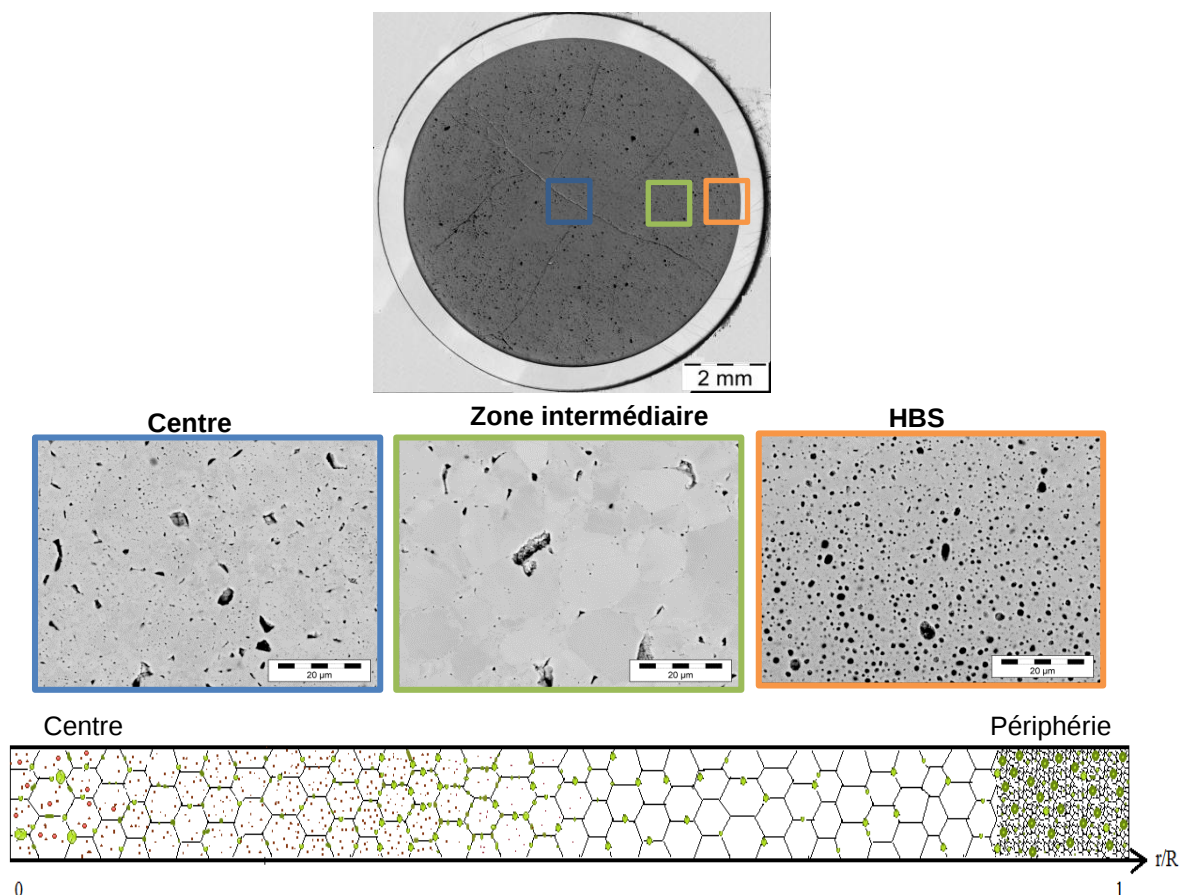


Figure 13 : Images au microscope optique et MEB d'un combustible irradié fort taux et illustration schématique de la distribution des bulles le long du rayon d'une pastille (vert : bulles intergranulaires ; rouge : bulles intragranulaires).

Trois zones sont distinguables entre le centre et la périphérie de la pastille :

- La périphérie est caractérisée par un effet de peau appelé RIM ou High Burn-up Structure (HBS), [38]. Cette zone est observée pour les combustibles REP ayant fonctionné avec des taux de combustion supérieurs ou égaux à 40 GWj/t_U. Du fait de la présence de l'eau caloporteuse autour de la gaine du crayon, la vitesse de certains neutrons est ralentie. Ces neutrons épithermiques ont une forte probabilité d'être absorbés par l'isotope ²³⁸U dès leur entrée dans le combustible. L'isotope ²³⁸U se transmute alors en ²³⁹Pu fissile et la teneur en plutonium peut devenir très élevée (3 % au bout de 50 GWj/t_U). Ainsi le taux de combustion augmente localement en périphérie. La conséquence est la formation d'une forte concentration en produits de fission ainsi qu'un endommagement important. Avec une température faible comprise entre 300 et 500 °C, la restauration des défauts est faible et la microstructure va complètement se modifier. Comme le montre la Figure 14, l'essentiel du gaz précipite en bulles d'environ 0,8 µm de diamètre. La porosité augmente significativement et peut atteindre jusqu'à 15 % volumique. De plus, les grains se subdivisent, formant des grains de taille comprise entre 0,2 et 0,8 µm.

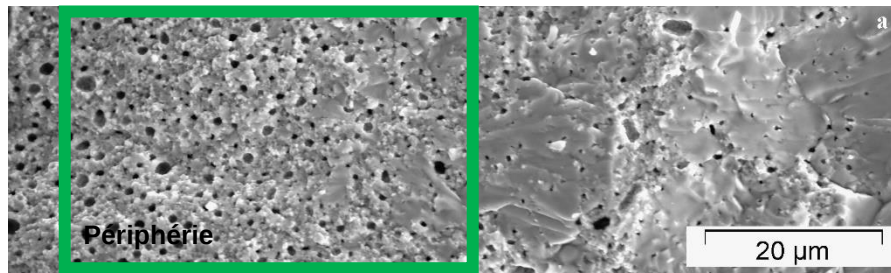


Figure 14 : Image MEB d'une fractographie illustrant une zone HBS d'un combustible UO₂, 78 GWj/t_u [38].

- La zone intermédiaire présente peu de modifications et préserve une microstructure proche de celle du combustible initial. La microscopie optique et le MEB ne permettent pas d'observer de précipitation des gaz de fission dans cette zone pour un taux de combustion inférieur à 50 GWj/t_u.
- La zone centrale présente une précipitation intergranulaire de bulles de taille micrométrique et une précipitation de bulles intragranulaires plus petites de l'ordre du dixième de micromètre, observables au MEB et au microscope optique. Les phénomènes décrits précédemment sont accentués au centre avec l'augmentation de la température. Les bulles intragranulaires peuvent atteindre une taille de l'ordre du micromètre.

3.1.2. Cas du combustible MOX

Cette partie présente la microstructure d'un combustible MOX de type MIMAS (procédé de fabrication « micronized masterblend ») après un fonctionnement nominal en réacteur.

Dans ce type de combustible, trois phases sont présentes correspondant à des teneurs massiques en plutonium différentes : une phase riche en Pu, sous forme d'amas (« amas Pu »), une phase pauvre en Pu, aussi sous forme d'amas (« amas U »), et une phase à teneur intermédiaire qui enrobe les deux autres phases. La fraction de produits de fission est plus élevée dans les amas riches en Pu que dans le reste de la pastille. Ainsi, sur la périphérie du combustible (0,5 à 1 R), ces amas se restructurent sous irradiation de manière « similaire » à ce qui est observé en périphérie des pastilles UO₂ avec la formation d'une zone de HBS.

Selon la température et donc la position radiale, il est constaté une augmentation de la taille des bulles et des sous-grains dans l'HBS des amas de Pu [38] [39]. Au centre, la structure des amas Pu change, en même temps que ceux de la périphérie, mais les grains restent d'une taille proche de leur taille initiale. La Figure 15 montre cette évolution le long du rayon de la pastille pour un combustible MOX MIMAS, 45 GWj/t_M :

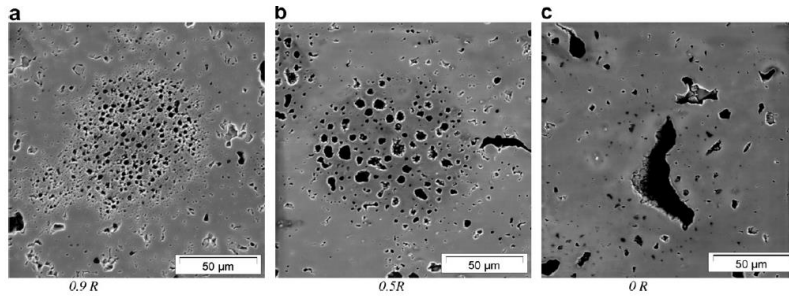


Figure 15 : Evolution radiale des bulles dans les amas Pu - HBS pour un combustible MOX 45 GWj/t_M (0,9R - 0,5R - centre) [38].

De plus, dans les zones HBS des amas riches en Pu, la taille de bulles augmente aussi avec le taux de combustion : les bulles coalescent et forment de plus grosses bulles.

Lorsque des amas riches en plutonium se situent en périphérie de la pastille, un gonflement élevé dans ces amas est observé, sans dispersion du combustible dans l'espace pastille-gaine. Un tel gonflement a pour conséquence la déformation de la surface libre de la pastille et éventuellement le premier contact de la pastille sur la gaine.

L'image en microscopie optique d'une coupe longitudinale, présentée Figure 16, illustre ce phénomène pour un combustible avec un taux de combustion moyen de 52 GWj/t_M et localement à environ 50 µm du bord, un taux de 180 GWj/t_M dans les amas. Cet amas est en surface du combustible, sur un chanfrein.

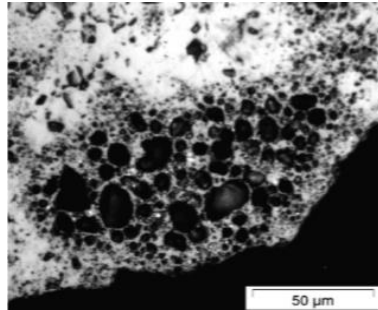


Figure 16 : Céramographie d'un combustible MOX, 52 GWj/t_M, visualisation du gonflement dans un amas en surface de chanfrein [38].

Dans le cas général, sans l'effet de la surface à proximité, le gonflement engendré par la formation de ces bulles peut être relié à leur pression interne, dont certaines évaluations ont montré qu'elle est élevée [38].

3.2. Effet d'un transitoire incidentel et accidentel

Cette partie décrit les conséquences d'un transitoire thermique ou de puissance sur la microstructure du combustible, la rapidité du phénomène pouvant entraîner la sur-pressurisation des bulles de gaz de fission.

Dans un premier temps, lors d'une rampe de puissance, sous l'effet de la température, les bulles de gaz, formées lors de l'irradiation, grossissent, migrent aux joints de grains et vont s'interconnecter (Figure 17). L'interconnexion se produit soit, par un effet de transport, où deux bulles vont migrer vers le même point, soit par un effet de coalescence, où deux bulles proches l'une de l'autre vont gonfler jusqu'à fusionner. Lorsque les bulles de gaz intergranulaires continuent de grossir et de s'interconnecter, elles forment alors des tunnels de gaz le long des joints de grains [23]. Quand un tunnel atteint une fissure ou une surface libre, le gaz est alors relâché en dehors de la céramique.

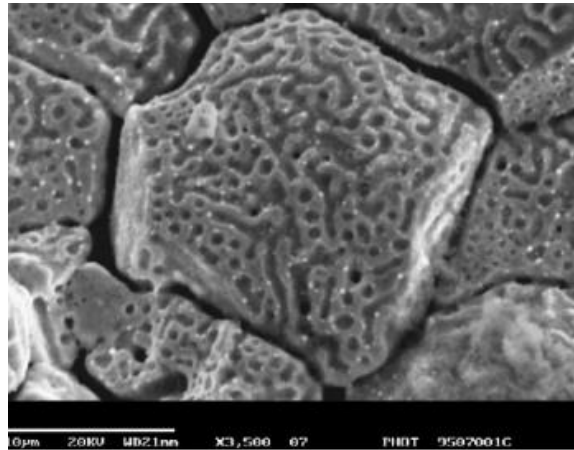


Figure 17 : Image MEB de la coalescence de bulles intergranulaires d'un combustible avec un taux de combustion de 21 GWj/tu, après une rampe et maintenu à 1800°C pendant 30min [23].

Les bulles de gaz de fission créées lors du fonctionnement nominal, voient leur pression augmenter sous l'effet de la température. Il a été observé une décohésion intergranulaire et de la fissuration, servant de voies d'accès au gaz vers le volume libre.

Différentes études en situation accidentelle hypothétique ont été menées sur des combustibles à fort taux de combustion. Une partie des études menées au CEA portent sur l'étude du relâchement des gaz de fission lors de ce type de transitoire. Classiquement des transitoires thermiques représentatifs de situations incidentelles ou accidentelles de type APRP ou RIA sont appliqués sur l'installation de traitement thermique MERARG [40] [41].

Par exemple, un traitement thermique de type APRP à 1200 °C a été effectué sur un combustible UO₂ à fort taux de combustion (57,4 GWj/tu). Deux pics de relâchement mesurés à environ 430 °C et 1330 °C sont expliqués par des bouffées de relâchement des gaz contenus dans des porosités fermées. La caractérisation de ces deux bouffées par un relâchement intense s'appuie sur les observations microstructurales où il est constaté une fracturation de l'échantillon en petits fragments de l'ordre de 50 µm.

Le programme analytique « GASPARD » [42] a permis d'effectuer des tests sur des échantillons de MOX et UO₂ irradiés. L'ensemble des traitements thermiques est réalisé dans un four à induction qui permet la mesure en ligne des gaz émis. Le cycle thermique appliqué est une séquence du type suivant : une rampe de 10 à 20 °C/s et un palier à 1000, 1100 ou 1200 °C pendant 10 min.

Dans un combustible MOX 3 cycles et un UO₂, 6 cycles, il a été observé une forte décohésion intergranulaire en périphérie, formant un réseau très dense de fissuration.

Le programme expérimental, nommé CABRI REP-Na, a été lancé dès 1992 par EdF et l'IRSN afin d'étendre les critères de tenue des crayons de combustible de type REP 17×17 fortement irradiés lors d'un accident d'injection de réactivité de type RIA. Dans ce cadre, huit essais avec combustible UO_2 et quatre essais avec du combustible MOX ont été réalisés dans la boucle CABRI, refroidie au sodium, à partir de crayons industriels reconditionnés. Une synthèse de ces essais proposée par J. Papin [43] et D.Lespiaux [44] décrit le comportement de 4 combustibles REP du même programme. Des fissures radiales et circonférentielles sont observées. Dans la majorité des tests, elles sont accompagnées de fragments inférieurs à 50 μm (Figure 18).

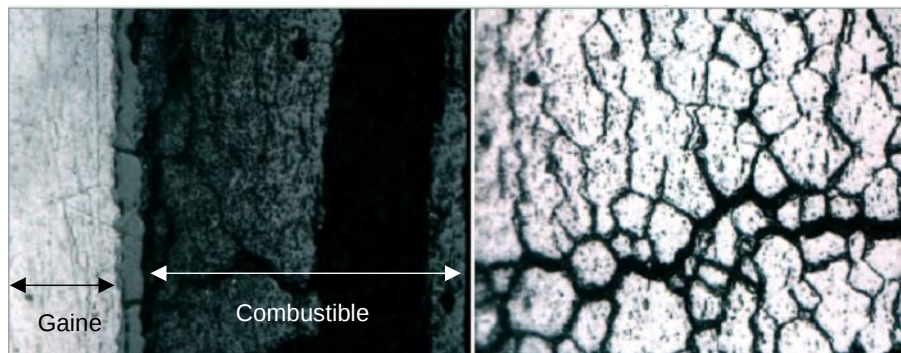


Figure 18 : Phénomènes de décohésion des grains et de fragmentation du combustible.

L'examen de la microstructure du combustible montre une forte décohésion des grains dans la zone externe des pastilles d' UO_2 alors qu'elle apparaît au niveau des agglomérats de Pu dans les combustibles MOX.