

Comportement du combustible en réacteur: relations entre propriétés d'usage et élaboration

L. Desgranges

▶ **To cite this version:**

L. Desgranges. Comportement du combustible en réacteur: relations entre propriétés d'usage et élaboration. Journée Expert du Pôle Européen de la Céramique, Nov 2018, Limoges, France. cea-02338751

HAL Id: cea-02338751

https://cea.hal.science/cea-02338751

Submitted on 25 Mar 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

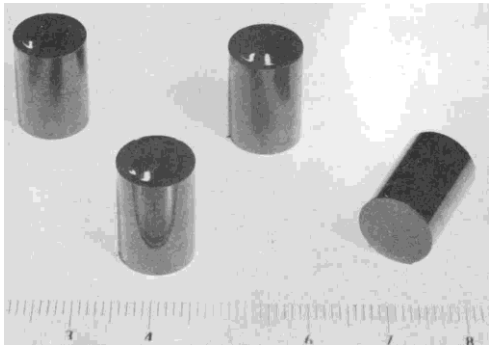
www.cea.fr

COMPORTEMENT DU COMBUSTIBLE EN RÉACTEUR : RELATIONS ENTRE PROPRIÉTÉS D'USAGE ET ÉLABORATION

Céramiques Réfractaires| L. Desgranges,
CEA,DEN,DEC

8 NOVEMBRE, 2018

LE COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE: UNE SIMPLE CÉRAMIQUE ?



Un cylindre : Φ = 8 mm, H=13 mm, poids 6-7 g

Oui, mais

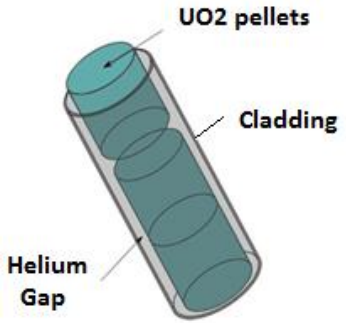
- L'un des produits industriels les plus purs avec le silicium
- Une composition isotopique sur mesure
- Des exigences de sûreté nucléaire draconiennes
- Une production annuelle de 1000 tonnes/an en France

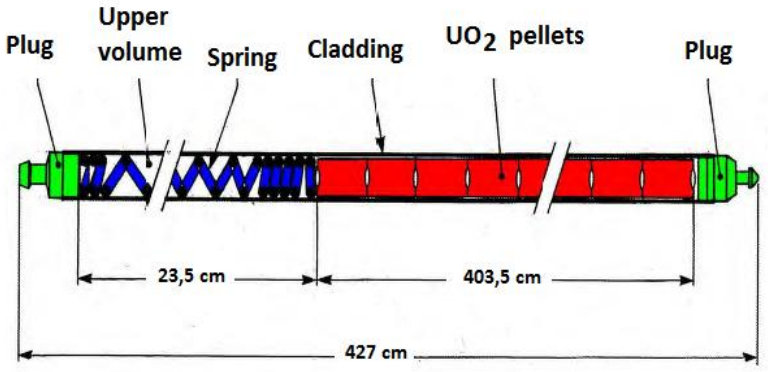
Une céramique technique produite en quantité industrielle

LES ÉTAPES DE LA VIE DU COMBUSTIBLE

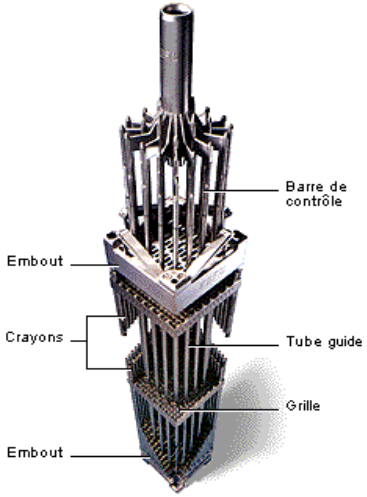
Fabrication à partir du yellow cake :

Concentration chimique du minerai U_3O_8
Transformation en UF_6
Enrichissement isotopique
Conversion en UO_2 poudre
Compaction et frittage
Rectification et mise en crayons
Remplissage en gaz
Queusotage

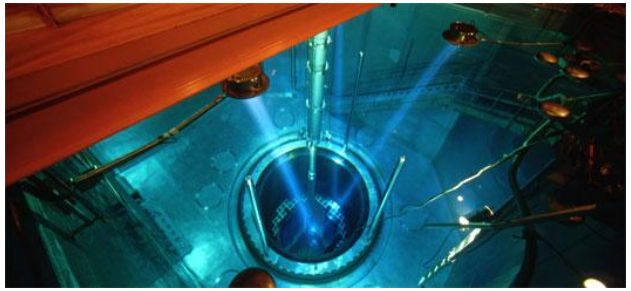




Insertion des crayons dans un assemblage



Mise en place dans le cœur

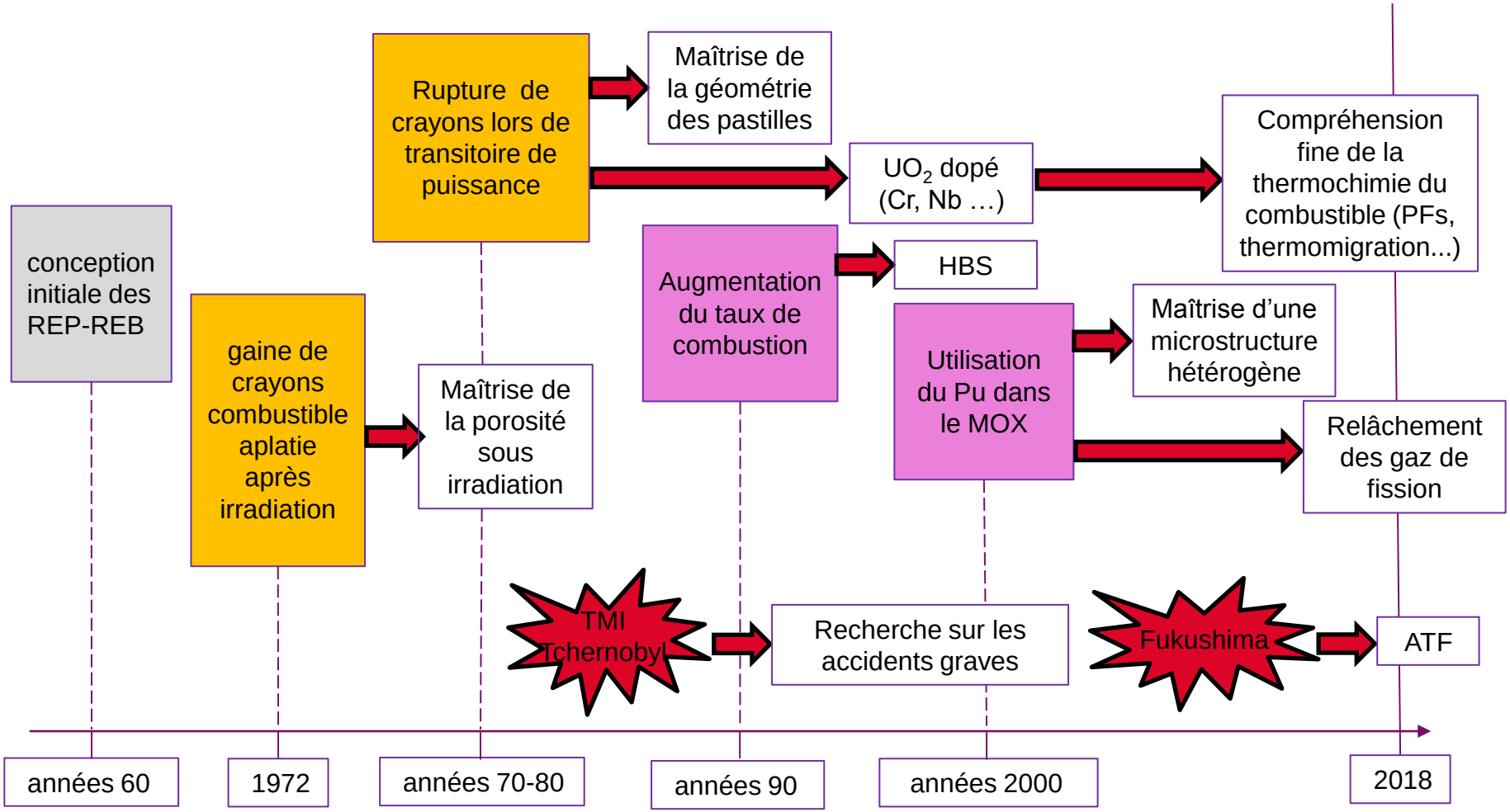


Mise en piscine après irradiation

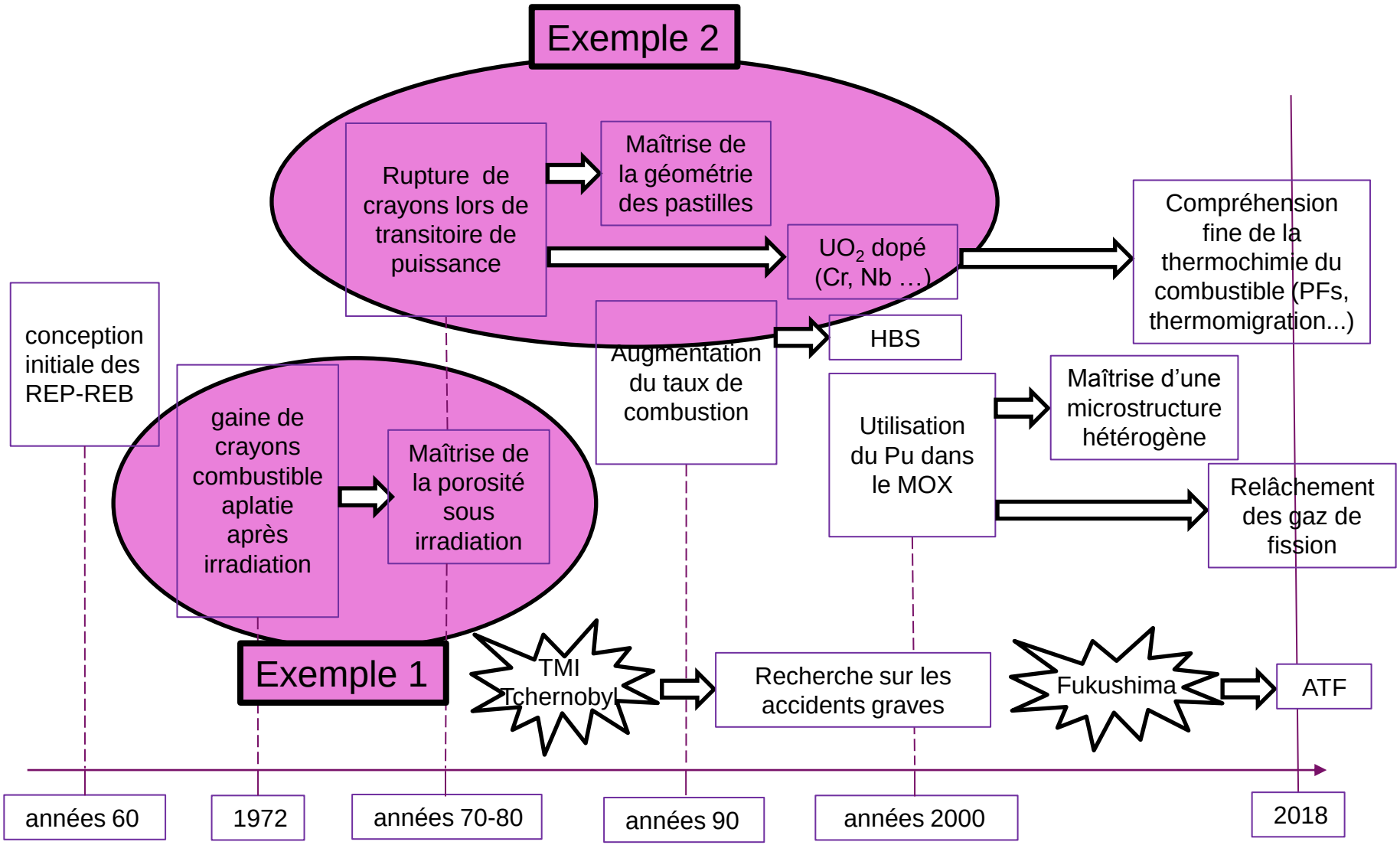
Transport vers retraitement ou stockage

UN PRODUIT EN CONSTANTE EVOLUTION

Pour pallier les modes de défaillance et s'adapter à de nouvelles contraintes



DEUX EXEMPLES D'EVOLUTION

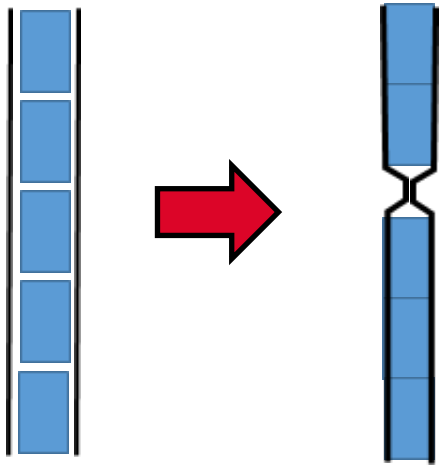


EXEMPLE 1 : UN COMPORTEMENT INATTENDU

During refueling of the Ginna reactor in April and May, 1972, it was observed that some fuel rods had short flattened or "collapsed" sections.
The cladding collapses were found to have resulted from the occurrence of gaps in the fuel pellet column within the rods. All of the rods with flattened sections were of the unpressurized type. For these rods, the inward creep of the cladding during operation was expected to continue until the cladding was supported by the fuel pellets. In those sections of rods where gaps in the pellet column occurred, the inward cladding creep was not arrested by the pellets, and continued until essentially complete flattening had taken place.

USAEC, Technical Report on Densification of Light Water Reactor Fuel, Nov. (1972)

Géométrie avant irradiation



Géométrie après irradiation

Pourquoi les pastilles ont-elles créé des vides dans le crayon ?

LE COUPABLE : LA POROSITÉ

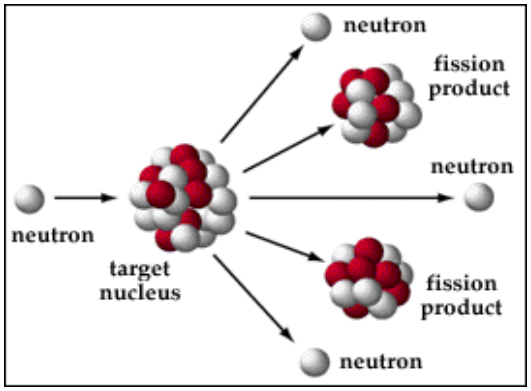
Typical pellet densities for light water reactor (LWR)fuels are in the range of 90 to 95 percent of theoretical density. The void volume in the pellets, amounting to 5 to 10 percent of the total pellet volume, is distributed in many small voids, or "pores", in the oxide matrix. The density of the oxide pellets is adjusted by the manufacturer to achieve a value considered most suitable for reactor service, based on irradiation experiments and prior reactor experience. The presence of some porosity in the fuel oxide is desirable to offset the tendency of the pellets to swell during service as fission products accumulate in the oxide matrix.

USAEC, Technical Report on Densification of Light Water Reactor Fuel, Nov. (1972)

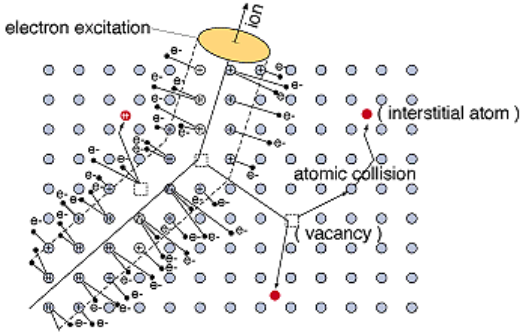
Car la porosité n’est pas stable sous irradiation

IRRADIATION ET POROSITÉ

La fission :
la source de chaleur
dans le combustible



Dissipation de l'énergie des PFs par freinage électronique et nucléaire



Interaction produit de fission et porosité

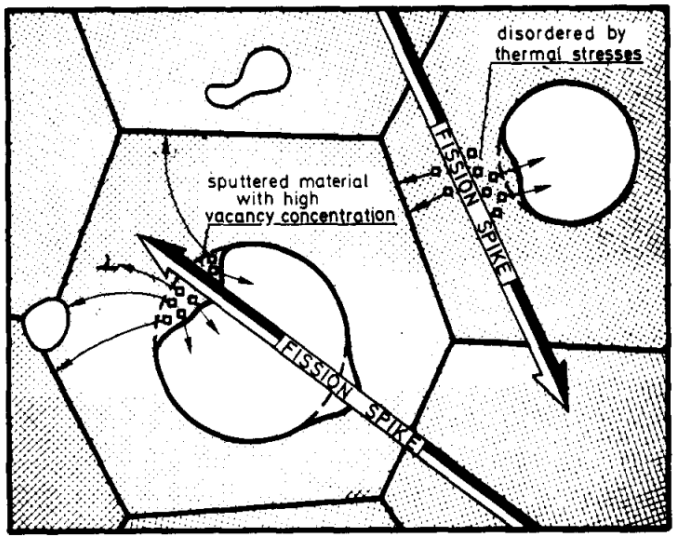


Fig. 3. Fission spike pore interactions.
Nuclear Engineering and Design 48 (1978) 49–67

La porosité de petite taille (<1µm) est instable sous irradiation

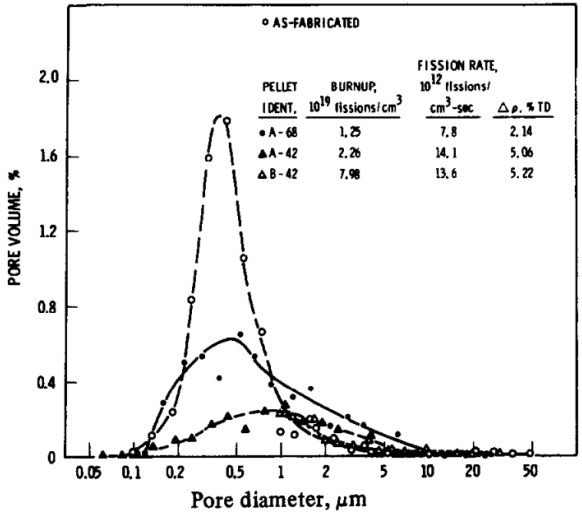


Fig. 2. A smoothed histogram showing the effect of irradiation on the volume distribution of porosity in an unstable sintered UO_2 fuel type (type 4).

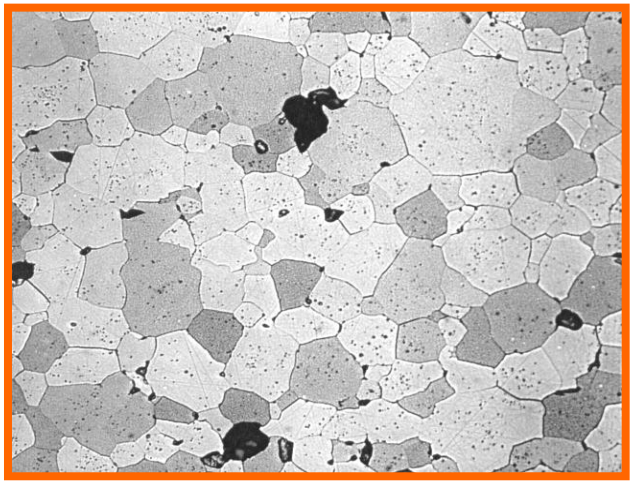
LE REMÈDE : MAITRISE DE LA POROSITÉ

Ajout d'un porogène lors de l'étape de broyage avant le frittage

⇒ création de porosité de grande taille stable sous irradiation

Frittage à 1700°C pendant 3 heures

⇒ réduire la fraction de porosité de petite taille instable sous irradiation



10 µm

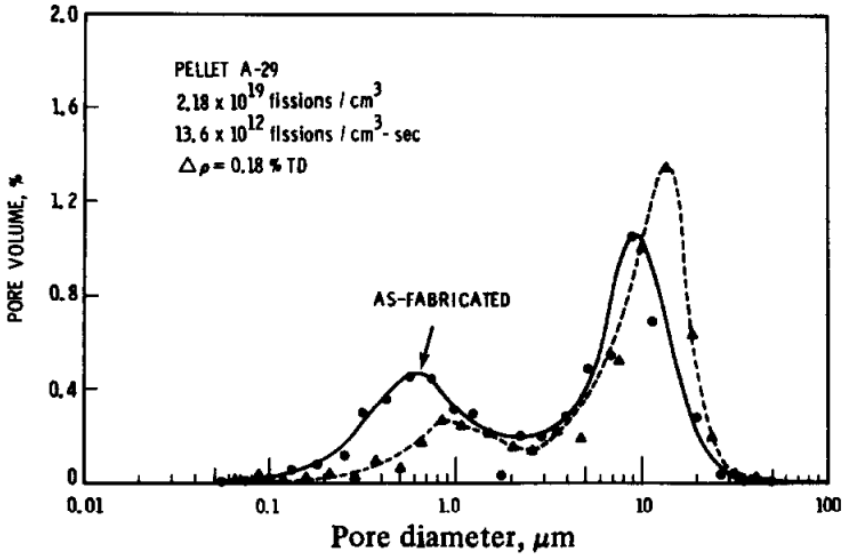


Fig. 3. A smoothed histogram showing the effect of irradiation on the volume distribution of porosity in a stable (pore-former) sintered UO_2 fuel type (type 6).

Journal of Nuclear Materials 62 (1976) 138–166

L'EXIGENCE DE SURETÉ: TEST DE REFRITTAGE

L'autorité de Sûreté Nucléaire exige de l'exploitant qu'il garantisse que son combustible ne va pas densifier lors de son fonctionnement en réacteur

⇒ Mise en place d'un test effectué statistiquement sur les pastilles issues de la chaîne de fabrication

test de refrittage effectué suivant la norme L'ISO 15646:2014 qui décrit un mode opératoire de mesurage de la densification de pastilles de UO_2, $(U,Gd)O_2$ et $(U,Pu)O_2$ par traitement thermique dans des conditions définies.

Existence d'une corrélation entre densification en pile et densification pendant un traitement thermique

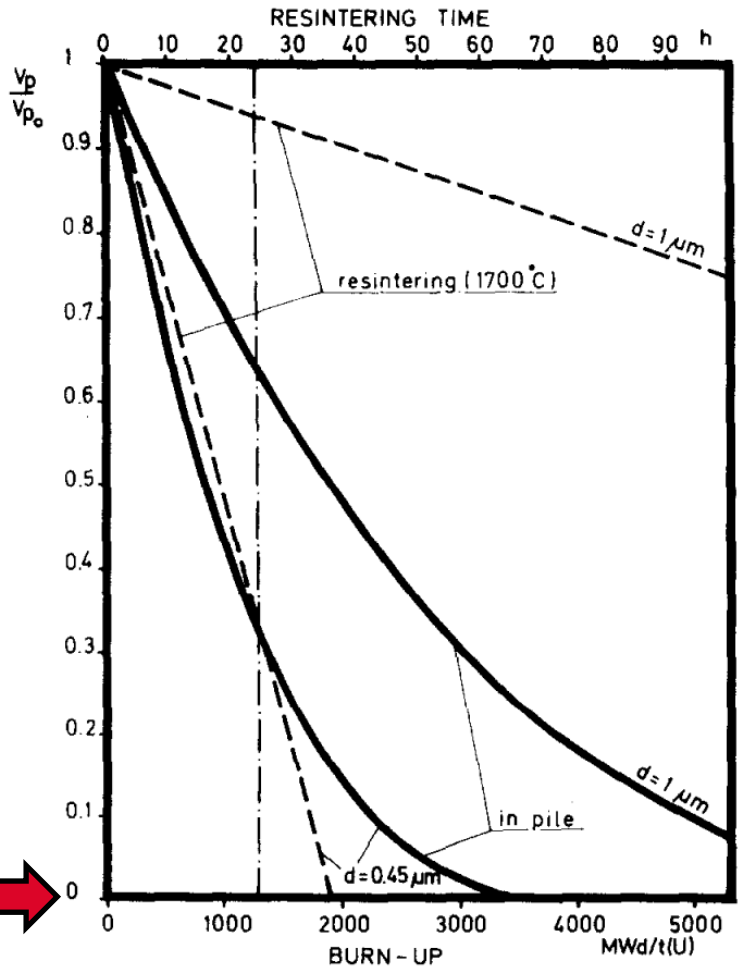


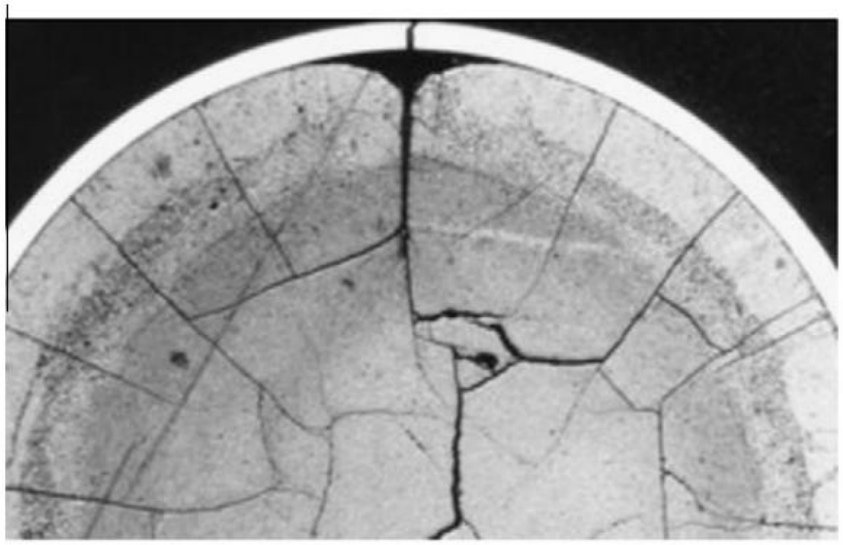
Fig. 7. Volume shrinkage of pores. Comparison of thermal sintering and in-reactor densification.

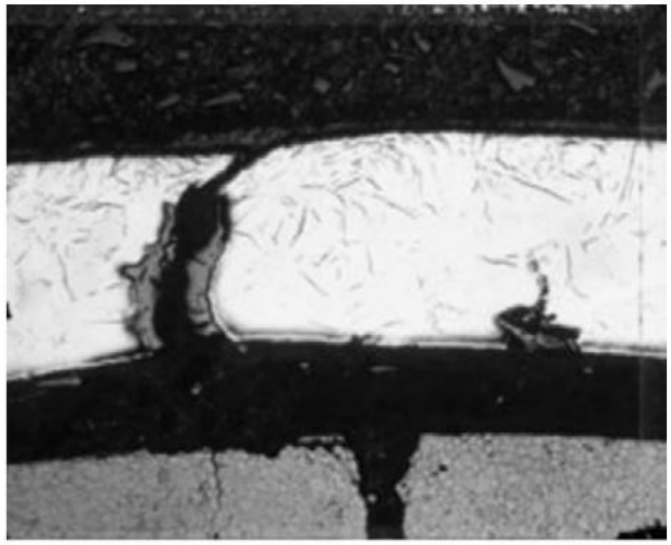
Nuclear Engineering and Design 48 (1978) 49–67

EXEMPLE 2 : CE QUE L'ON VEUT ÉVITER

Dans le années 1970, lors de changements de puissance dans des Réacteurs à Eau Bouillante (REB) des relâchements d'éléments radioactifs ont été détectés dans le circuit primaire

B.J. Lewis et al./Journal of Nuclear Materials 408 (2011) 209–223





Des procédures pour traiter ces incidents
Mais
Nécessité de les limiter au maximum

UNE DES CAUSES LIÉE À LA FABRICATION

Certaines pastilles peuvent être fissurées, écaillées, voire présenter des manques de matière

⇒ surconcentration de contraintes au droit des singularités

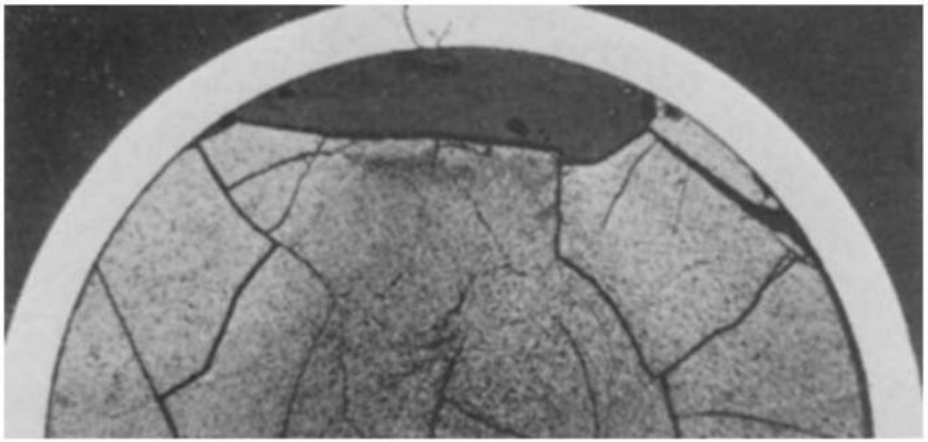
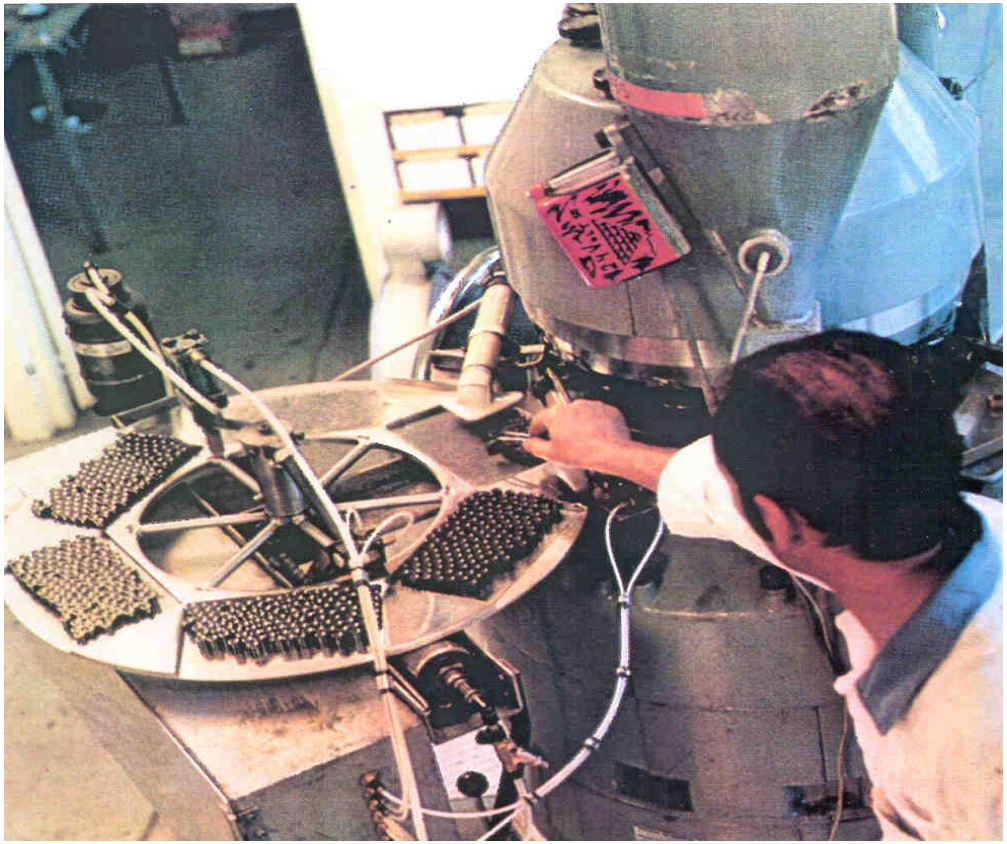


Abb. 8 Schliffbild eines PCI-Defekts gegenüber einer Tablettenabplatzung.

Journal of Nuclear Materials 81 (1979) 19-30

LA SOLUTION DRACONIENNE

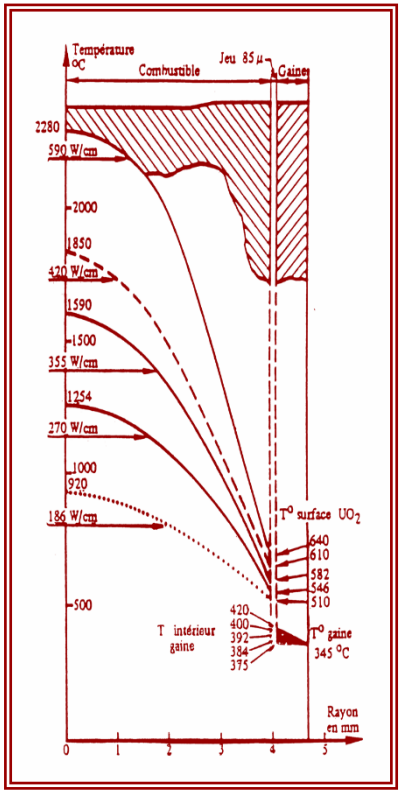
Chaque pastille est inspectée visuellement lors de la fabrication

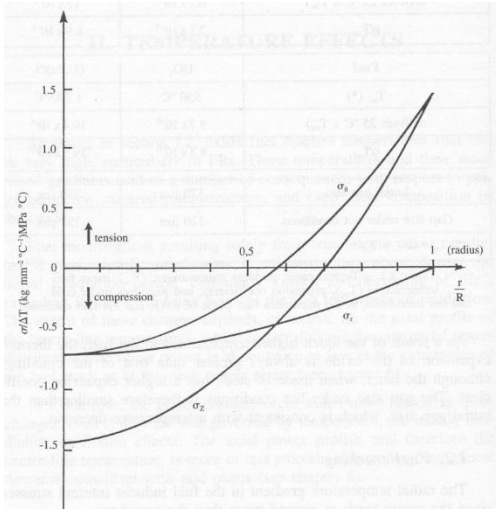


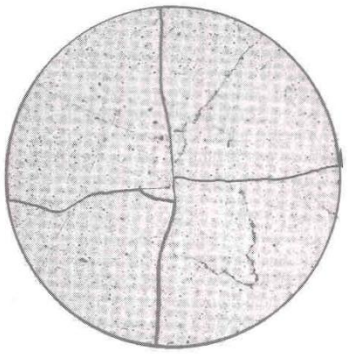
Méthode utilisée en 1980
Aujourd'hui automatisée

CHARGEMENT MÉCANIQUE DE LA GAINE

Le gradient de température à l'intérieur de la pastille génère des contraintes qui fracturent la pastille



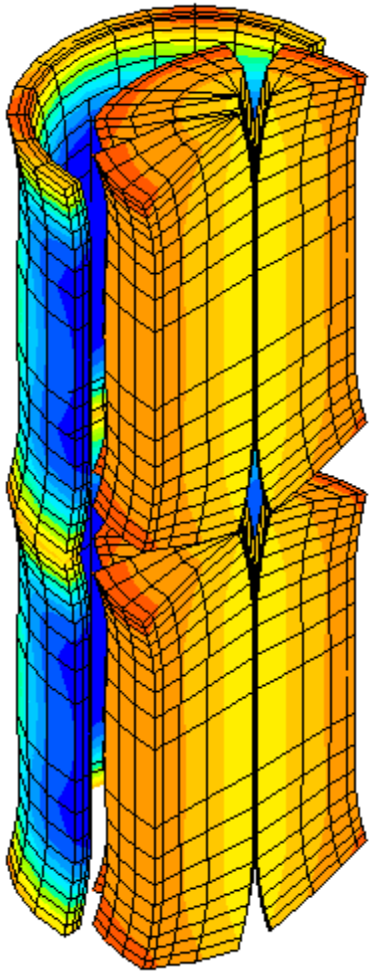




(*a*) après 1 cycle annuel d'irradiation en REP : fractures radiales

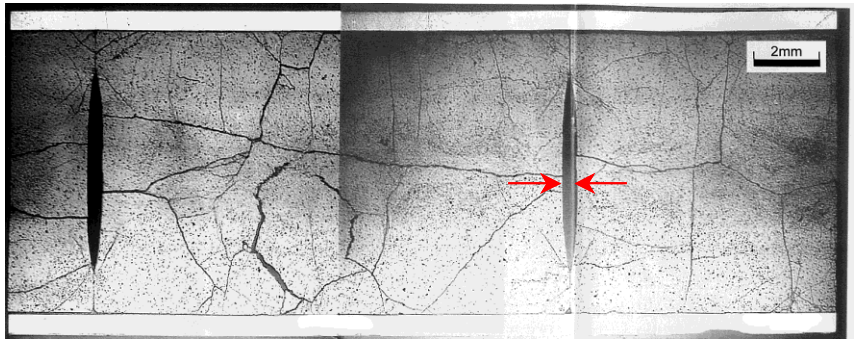
Les quartiers de pastille ainsi créés prennent une forme en diabolo à cause du gradient de température.

⇒ Contraintes maximales au niveau des interpastilles

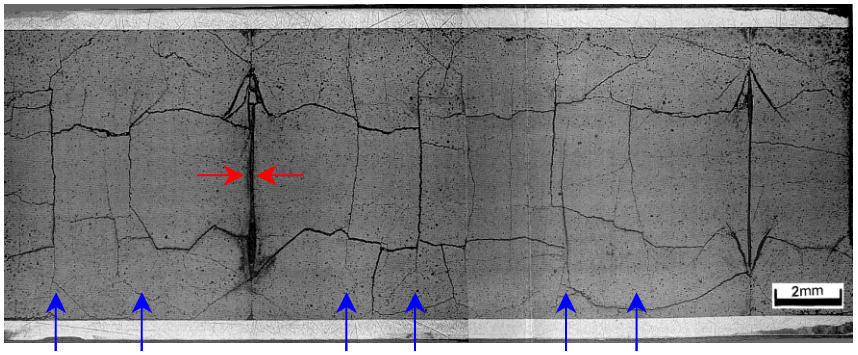


UN MOYEN DE RÉDUIRE LES CONTRAINTES

Ménager un évidement au niveau de l'interpastille



Fonctionnement normal



après une augmentation de puissance

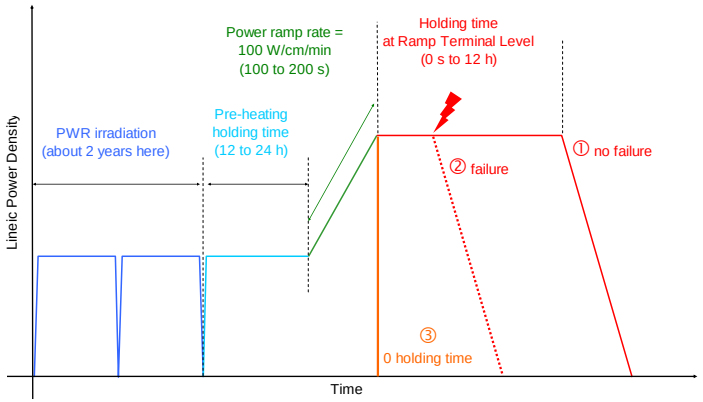
Permet d'accommoder les contraintes générées par le gonflement du combustible lors d'une augmentation de la puissance du réacteur,

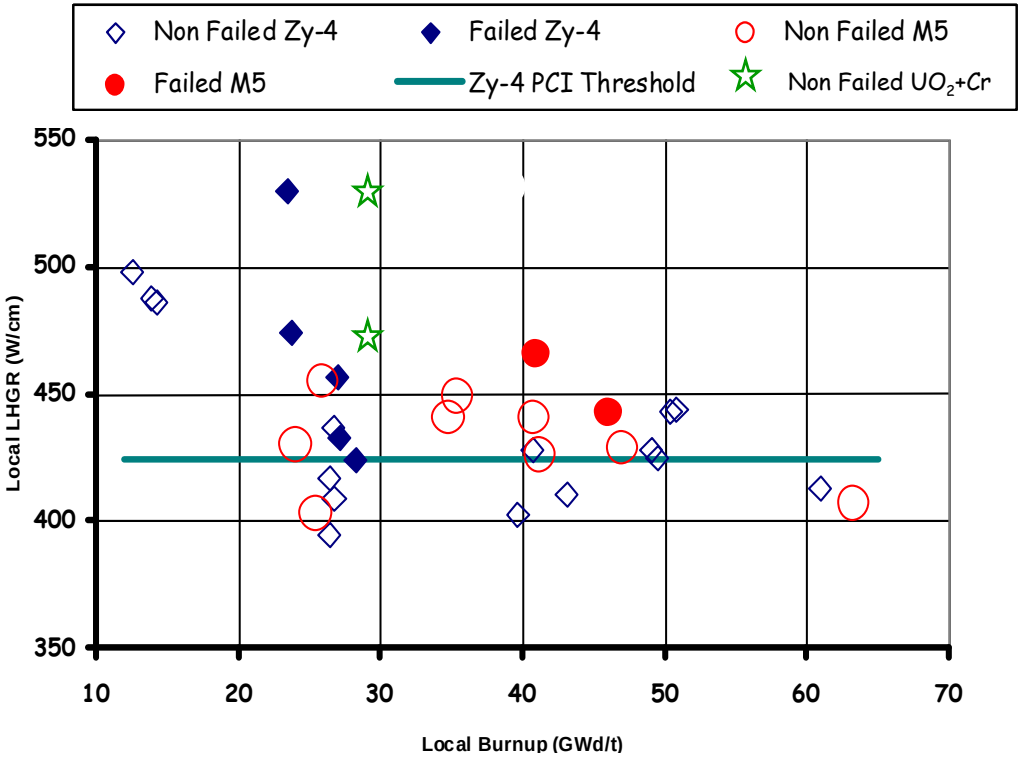
Ref : Yannick Guérin cours M2 Nuclear Energy

UN SEUIL TECHNOLOGIQUE

Définition d'un protocole de test sur crayons combustibles irradiés pour définir une limite maximum en puissance pour un fonctionnement sans rupture

⇒ Spécification technique d'exploitation des REPs





Ref : Yannick Guerin cours M2 Nuclear Energy

POUR FAIRE MIEUX : COMPRENDRE

Une démarche de R&D de plus de 30 ans

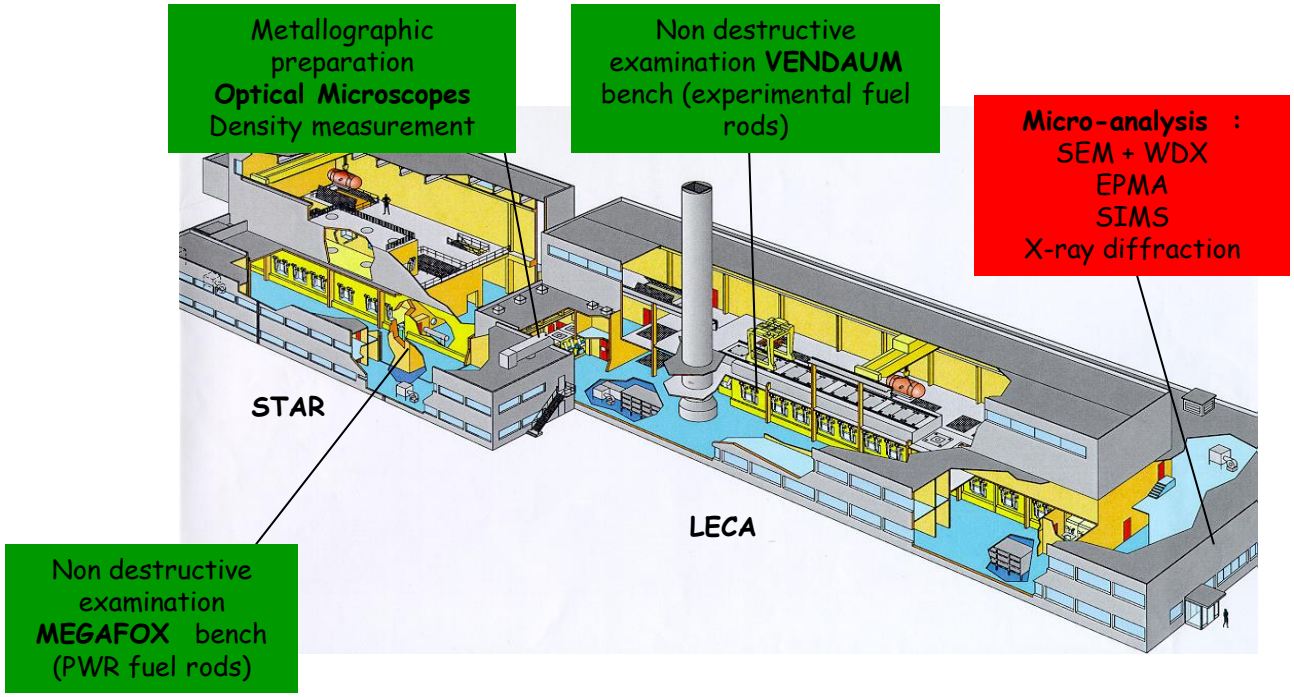
1. faciès de rupture ⇒ Corrosion Sous Contraintes par PFs (I, …)
   hypothèse vérifiée par des expériences en labos chauds

2. Contraintes mécaniques ⇒ Recherche d'un seuil en contraintes
   modélisation 1, 2 et 3D du contact pastille-gaine
   en utilisant les propriétés mécaniques mesurées en labos chauds

3. Produits de Fission corrosifs ⇒ comment sont-ils créés
   mesure en labos chauds
   modélisation thermochimique

AVEC DES EXPÉRIENCES EN LABO CHAUD

Sensiblement plus compliqué qu'en labo banalisé (plus cher aussi)





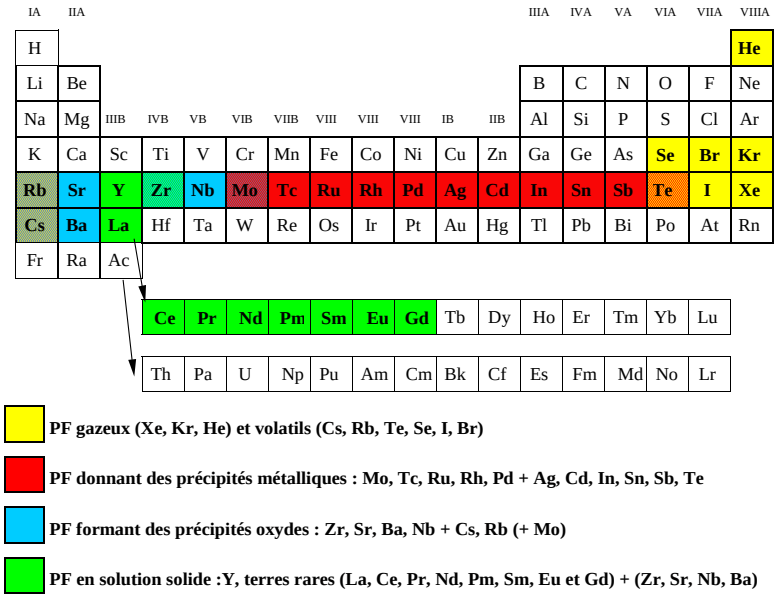
télémanipulation



Nucléarisation du MEB

LA THERMOCHIMIE DU COMBUSTIBLE

Un système multi-composant



PF gazeux (Xe, Kr, He) et volatils (Cs, Rb, Te, Se, I, Br)

PF donnant des précipités métalliques : Mo, Tc, Ru, Rh, Pd + Ag, Cd, In, Sn, Sb, Te

PF formant des précipités oxydes : Zr, Sr, Ba, Nb + Cs, Rb (+ Mo)

PF en solution solide :Y, terres rares (La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu et Gd) + (Zr, Sr, Nb, Ba)

Constitution d'une base de données thermochimiques adaptée au combustible nucléaire

Dans un état fortement hors d'équilibre :

1- gradient de température

2- sous irradiation
irradiation modifie les diagrammes de phases

3- gradient de potentiel chimique
thermomigration

Avec des cinétiques de migration différentes

1- diffusion dans UO_2

2- formation de nouveaux composés
CsI, Cs_2MoO4, $Cs_2U_2O_7$…

3- migration des composés

UNE PISTE DE SOLUTION

Doper le combustible avec des espèces chimiques qui pourraient limiter la formation de composés de Produits de Fission corrosifs pour la gaine

Une amélioration avec l'UO_2 dopé Cr :

Commercialisation par AREVA d'un UO_2 dopé Cr (voir par exemple http://www.neimagazine.com/features/featurefuelling-innovation-4899801/)

Mais les mécanismes mis en jeu restent toujours mystérieux

Encore du travail !!!

CONCLUSION

Les exigences de sûreté structurent la R&D sur le combustible nucléaire.

Les exigences industrielles structurent les évolutions du produit combustible nucléaire : on ne change que lorsqu'il y a une amélioration avérée.

Les contraintes des réacteurs et labos chauds définissent le temps de développement d'un nouveau produit (≈10 ans).

Un cadre très contraint
Où le procédé d'élaboration est l'un des rares degré de liberté

Développement d'une R&D spécifique :
- pour maîtriser le comportement en réacteur
- avec des modifications du processus de fabrication
- en se basant sur des mécanismes physiques validés par l'expérience et la modélisation

Merci
Pour votre attention

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
Centre de Cadarache | 13108 Saint-Paul lez Durance Cedex

DEN
DEC
SA3E

Etablissement public à caractère industriel et commercial | R.C.S Paris B 775 685 019