

Étude du comportement des produits de fission dans le combustible nucléaire UO_2

F. Gupta¹, G. Brillant¹, A. Pasturel²¹ IRSN, DPAM, SEMIC, LETR² CNRS, LPMC

Contexte : les accidents graves de réacteur à eau sous pression

Dans les réacteurs à eau sous pression, lors de transitoires accidentels, il existe un risque de relâchement de produits de fission (PF) hors du combustible. Ces éléments radioactifs peuvent, en cas de rupture de l'étanchéité de l'enceinte du réacteur, avoir un impact radiologique conséquent sur l'environnement et la population.

⇒ Intérêt d'étudier le comportement des PF dans le combustible UO_2

Un accident grave de réacteur nucléaire peut se produire si il y a :
perte de réfrigérant primaire

et
défaillance du système de sauvegarde.

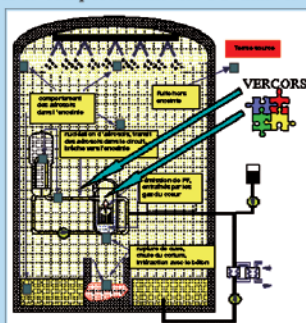
↓
la température du combustible augmente

↓
les produits de fission (PF) migrent dans le combustible

↓
les PF peuvent être relâchés hors du combustible

↓
la radioactivité augmente dans l'enceinte du réacteur

↓
risque de rejets radioactifs dans l'environnement ("Terme Source")



Nécessité d'acquérir des données supplémentaires pour interpréter et modéliser le comportement des PF en réacteur.

Objectif de l'étude : En cas d'accident grave il est essentiel de :

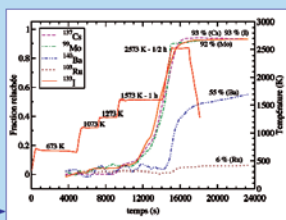
- Modéliser le comportement des PF dans le combustible;
- Connaître les cinétiques et les taux de relâchement des PF.

⇒ 2 études complémentaires envisagées : analyse de résultats expérimentaux (VERCORS, PHEBUS) + calculs théoriques (calculs ab initio).

IRSN/LETR : Étude des produits de fission

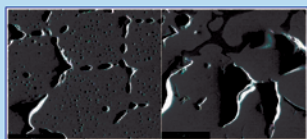
Essais VERCORS :

Les essais VERCORS ont pour but de mesurer les taux et les cinétiques de relâchement des produits de fission à partir d'un combustible soumis à des transitoires de température proches des conditions accidentelles de réacteur à eau sous pression.



VERCORS 5 : Cinétiques et taux de relâchement des produits de fission Cs, Mo, Ba, Ru, I.

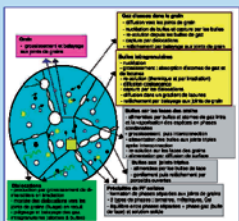
Données sur le combustible en réacteur :



Des microanalyses sur les échantillons combustibles des essais PHEBUS et VERCORS nous donnent des informations sur la microstructure du combustible après irradiation.

◀ Image par SE (Secondary Electron) d'un combustible 30 GWj/t soumis à des conditions accidentelles (essai FPT2).

Modélisation détaillée du comportement des PF (code MFPR) :



Description physique du comportement des PF à partir de modèles utilisant les meilleures connaissances physiques.

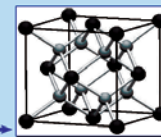
Utilisé pour l'interprétation du comportement des PF dans le cadre des essais VERCORS ou PHEBUS.

CNRS/LPMC : Calculs ab initio

Les calculs ab initio (code VASP) :

apportent des informations sur :

- ✓ les propriétés de UO_2 ;
- ✓ la stabilité des défauts de structure;
- ✓ les sites d'incorporation des produits de fission;
- ✓ la solubilité des produits de fission dans UO_{2+x} ;
- ✓ le chemin de migration des produits de fission.



Maille primitive de UO_2 (12 atomes).

Calculs réalisés sur :

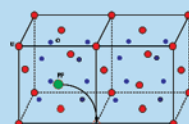
- une cellule de 96 atomes ($2 \times 2 \times 2$ maille primitive);
- dans les approximations de DFT-GGA et DFT-GGA+U ($U = 4.0$ eV).

Détermination des énergies de solubilisation du césium (Cs) dans UO_{2+x} :

apportent des informations sur la solubilité et les sites d'incorporation de Cs.

Sites	E_{Cs}^{inc} (eV)	E_{Cs,S_x}^{sol} (eV)					
	Présente étude	Présente étude	Présente étude	Grimes [1991]	Grimes [1991]	Grimes [1991]	Grimes [1991]
lacune de O	6.4	6.4	8.4	10.4	9.10	12.51	15.92
lacune de U	-1.2	6.1	2.0	-2.0	7.26	0.43	-6.39
interstitiel	7.5	7.5	7.5	7.5	9.93	9.93	9.93

Détermination des énergies de migration de Cs dans UO_{2+x} :



Le PF doit franchir une barrière d'énergie pour passer d'une configuration à l'autre

Les informations apportées par les calculs ab initio sont ensuite utilisées dans les codes de calculs de l'IRSN modélisant le comportement des PF en situation accidentelle (ELSA, MFPR).

Perspectives

- ▶ Étude de la migration d'autres PF par une méthode ab initio;
- ▶ Détermination des phases les plus stables pour chaque PF par des calculs de thermochimie (NUCLEA/GEMINI2);
- ▶ Confrontation des modèles proposés aux résultats des essais VERCORS.

F. Gupta*, G. Brilliant* - A. Pasturel**

Pour obtenir ces informations, les simulations numériques réalisées en collaboration avec le CNRS/LPMMC de Grenoble se sont avérées être un bon complément aux études expérimentales. Ainsi, les calculs *ab initio* (calculs de structure électronique) dans le cadre de la Fonctionnelle de la Densité (DFT) ont été choisis pour obtenir des informations sur les défauts de structure, la solubilité et le chemin de diffusion des produits de fission dans le combustible. Ces informations permettent une meilleure interprétation des résultats des essais VERCORS et pourront également être utiles pour des logiciels simulant le relâchement des produits de fission tels que le module ELSA du logiciel ASTEC ou le logiciel MFPR dans lequel la solubilité des produits de fission dans le combustible est un facteur déterminant.

NOTES