

**NUCLEA : UNE BASE DE DONNÉES THERMODYNAMIQUES
 POUR LES APPLICATIONS NUCLÉAIRES**
M. Barrachin¹, B. Cheynet², E. Fischer²¹ Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), DPAM, SEMIC, LETR, Centre de Cadarache, BP 3, 13115 Saint-Paul-Lez-Durance (France)² THERMODATA-INGP-CNRS, 38400 St Martin d'Hères (France)
CONTEXTE : SIMULATION DE LA PROGRESSION DU CORIUM PENDANT UN ACCIDENT GRAVE
Accident Grave (AG) :

 Un accident grave de Réacteur à eau sous pression (REP) peut survenir
 Suite à la perte conjointe :

 → Fusion du cœur ($UO_2 + \dots$)

le corium

 Mélanges de matériaux issus de la fusion partielle ou totale
 des structures du cœur (combustible, structures internes, barres de contrôle, produits de fission ...)

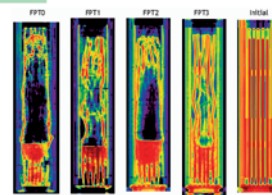
**sa progression
 et les risques
 associés**

- Relocalisation du corium en fond de cuve, interaction du corium avec la cuve
- Intégrité de la cuve
- Interaction potentielle du corium avec le sol de l'enceinte en béton
- Intégrité de l'enceinte et contamination radiologique potentielle des sols et de l'environnement

 du refroidissement de cœur de réacteur
 +
 de tout ou partielle des systèmes de sécurité

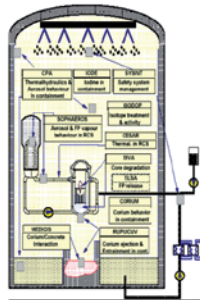
 Programme International PHEBUS FP
 Fusion de combustible

Test	Combustible	Tmax (K)	Atm.
FPT0	UO ₂ (frais)	> 2600	fort. oxydante
FPT1	UO ₂ (23 GWd/tU)	> 2600	fort. oxydante
FPT2	UO ₂ (32 GWd/tU)	> 2600	faibl. oxydante
FPT3	UO ₂ (24 GWd/tU)	> 2400	faibl. oxydante

Radiographies de la section d'essai en UO₂
LOGICIEL DE SIMULATION ASTEC
Accident simulé : depuis la perte de
 réfrigérant jusqu'au relâchement de
 produits de fission dans l'environnement
 → grand nombre de phénomènes
 physiques modélisés

**Validation (entre autres) sur la base des
 essais PHEBUS FP**
**Thermochimie du corium importante à
 plusieurs niveaux :**

- Progression du corium dans la cuve (DIVA)
- Interaction du corium avec le fond de cuve en acier (DIVA)
- Interaction du corium avec le sol de l'enceinte en béton (MEDICIS)


OBJECTIFS DE RECHERCHE
Objectif : Disposer d'un outil permettant d'appréhender la thermochimie du corium et pouvant être intégré dans les logiciels de simulation développés à l'IRSN (ICARE/CATHARE, ASTEC, ...)

Spécificités de la thermochimie du corium :

- Un système thermochimique à grand nombre (> 20) d'éléments chimiques et de phases
- Un large domaine de température (1000-3500 K)
- Un large domaine de composition depuis les métaux (aciers ...) jusqu'aux oxydes (combustible ...)

Difficultés :

- Absence de données expérimentales à haute température dans la littérature
- Problèmes technologiques/réglementaires pour en produire (hautes T, potentiel d'oxygène à contrôler, combustible à manipuler)

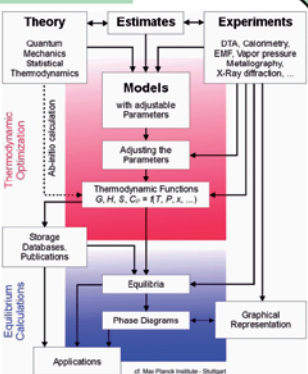
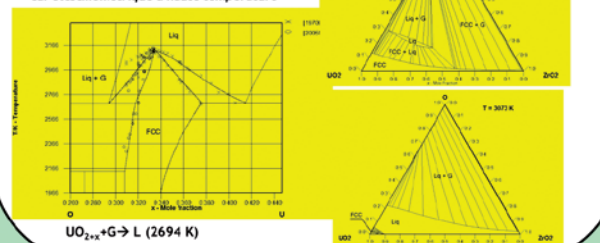
Développement d'une approche prédictive et validée permettant de calculer les grandeurs thermodynamiques à l'équilibre pour le corium (initée en 1990)

MODELISATION
Approche CALPHAD

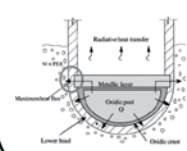
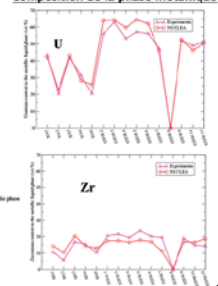
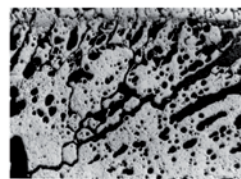
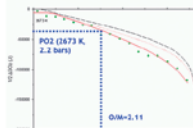
- Modéliser les énergies de Gibbs des phases de chacun des diagrammes de phases binaire à partir de données expérimentales/calculées (de la littérature ou de programmes internationaux spécifiques)
- Extrapoler les modélisations des énergies de Gibbs des phases solutions binaires dans les systèmes ternaires et éventuellement modéliser les systèmes ternaires
- Assembler l'ensemble de la modélisation de ces systèmes réduits

NUCLEA : 20 éléments

- éléments combustibles : U-O-Zr
- éléments de structure : Fe-Ni-Cr-B-C-In-Ag
- éléments du béton : Mg-Ca-Si-Al
- produits de fission : La-Ru-Ba-Sr
- Gaz : Ar-H

Exemple de développement récent :
 modélisation de U-O et U-O-Zr dans la partie
 sur stœchiométrique à haute température

VALIDATION
Exemple : programme OCDE MASCA : Etude de la stratification d'un corium en fond de cuve

- Enjeu sûreté : tenue de la cuve
- Etude de la thermochimie d'un corium
- O-U-Fe-Zr non complètement oxydé en atmosphère réductrice à T > 2800 K
- Mesure de la composition des phases après trempe
- Comparaison NUCLEA/mesures


Composition de la phase métallique

PREDICTION
**Exemple : calcul de la température de délocalisation du
 combustible dans les essais PHEBUS FP FPT0 & FPT1**

 Composition mesurée (U_{0.86} Zr_{0.12} Fe_{0.01})O_{2-x}


Estimation de la surstœchiométrie du combustible à partir de la modélisation du potentiel d'oxygène

Liquéfaction calculée entre 2420 et 2920 K en accord avec les observations expérimentales

COLLABORATION AVEC LE CNRS/SIMAP et THERMODATA POUR LA MODELISATION THERMODYNAMIQUE DES PHASES CONDENSEES DU CORIUM
Domaines de compétence de CNRS-SIMAP et THERMODATA

- Modélisation CALPHAD pour les phases non idéales (B. Cheynet, E. Fischer)
- Bases de données thermodynamiques composées stœchiométriques (B. Cheynet)
- Calculs ab-initio (A. Pasturel)
- Mesures thermodynamiques (C. Chatillon)

Modélisation CALPHAD pour les phases non idéales

**COLLABORATION DANS LE DOMAINE DE LA
 MODELISATION DES PHASES CONDENSEES DU CORIUM**

 Participations communes à des projets internationaux CE
 CIT, CE ENTHALPY, SAMANTHA

 Utilisation de NUCLEA dans le cadre de projets
 internationaux ITC CORPHAD, ITC METCOR, ITC
 PRECOS

Utilisateurs de NUCLEA :

 CEA, EDF, AREVA, VTT (FIN), KAERI (COR), NITI (RUS),
 IBAE (RUS), USA, JAPON, CHINE

Domaines de compétence du LETR (IRSN)
 (Laboratoire d'Etudes du corium et du Transfert de Radioéléments)

- Physico-chimie des produits de fission et radiochimie
- Physique des aérosols
- Thermohydraulique (transferts énergie et masse)
- Thermodynamique du corium
- Développement de logiciels de calcul
- Etudes - réacteur -

THERMODYNAMIQUE DU CORIUM

PERSPECTIVES

- Poursuite du travail de collaboration IRSN-CNRS-SIMAP-THERMODATA pour le développement et la maintenance de NUCLEA
- Définition des essais expérimentaux à réaliser et interprétation des résultats expérimentaux permettant soit la validation soit le réexamen de la modélisation.
- Développement (en cours) d'une base de données spécialement dédiée à la thermodynamique du combustible U-O-Pu-Cs-Mo-La-Ru-Ba-Sr-Si-C-Fe-(Ar-H) (MEPHISTA)

M. Barrachin* - B. Cheynet**, E. Fischer**

A la fin des années 80, le développement d'une base de données thermodynamiques est apparu comme une nécessité pour mener les recherches dans le domaine nucléaire et plus précisément les études liées à la sûreté des réacteurs de puissance dans le domaine de la prévention des accidents graves. Dans ce cadre, l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) s'est rapproché en 1989 de l'unité mixte du CNRS, de l'INPG et de THERMODATA (Grenoble) avec pour objectif le développement d'un tel outil. La méthode CALPHAD permettant de décrire les dépendances en température, en concentration et en pression des énergies de Gibbs des différentes phases (composés et solutions) d'un système chimique donné a été utilisée pour mener à bien cette entreprise. Plus de dix années ont été nécessaires pour finaliser ce travail de grande ampleur. Aujourd'hui, la base de données NUCLEA permet la détermination des propriétés thermodynamiques à l'équilibre pour le système constitué des 18 éléments Ag-Al-B-Ba-C-Ca-Cr-Fe-In-La-Mg-Ni-O-Ru-Si-Sr-U-Zr.

Le système contient l'ensemble des substances chimiques qui pourraient interagir en cas d'accident grave, c'est à dire les matériaux combustibles (UO₂, Zr), les structures internes de cuve (Fe, Ni, Cr), les barres de contrôle (B, C, In, Ag), les produits de fission considérés comme faiblement volatils (Ru, La, Ba, Sr) qui pourraient contribuer à la puissance résiduelle et les composants du béton (Al₂O₃, CaO, SiO₂, MgO). Aujourd'hui un important travail de qualification de NUCLEA est en cours. Il consiste à mettre en regard les résultats expérimentaux obtenus sur des systèmes chimiques complexes (par exemple U-O-Zr-Fe-Ni-Cr) et les prédictions de NUCLEA afin de vérifier la pertinence de la base dans des domaines de compositions clés pour l'analyse de sûreté et la cohérence globale de l'approche pour la modélisation des diagrammes de phases complexes.

Parallèlement, le développement de NUCLEA continue en intégrant au fur et à mesure dans la modélisation, les nouvelles données thermodynamiques publiées soit dans la littérature ouverte ou soit dans des programmes spécifiques (ENTHALPY, ISTC CORPHAD,...) dans lesquels IRSN et CNRS-INPG-THERMADATA apportent leur expertise dans la définition des besoins à couvrir pour l'amélioration de NUCLEA. La base de données NUCLEA actuellement utilisée dans de nombreux pays européens mais également au Japon, en Chine, en Corée ou encore au Etats-Unis peut être considérée comme un outil de référence pour les études liées à la sûreté des installations dans le domaine de la prévention des accidents graves. En suivant la même démarche que pour la construction de NUCLEA, une base de données (MEPHISTA) permettant d'appréhender la thermodynamique de combustibles aussi différents que le dioxyde d'uranium, le MOX, ou la particule TRISO est en cours de développement.

.....

NOTES