

## Calcul des propriétés thermodynamiques de l'oxyde mixte $U_{1-y}Pu_yO_2$ par la méthode de simulation moléculaire classique Monte Carlo.

**Cyrille Takoukam Takoundjou<sup>1</sup>, Emeric Bourasseau<sup>1</sup>, Véronique Lachet<sup>2</sup>**

<sup>1</sup>CEA, DEN, Centre de Cadarache, DEC/SESC, 13108 saint Paul-lez-Durance, France

<sup>2</sup>IFP Energies nouvelles, 1 et 4 avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil-Malmaison, France

### Abstract

Depuis des décennies, l' $UO_2$  est utilisé comme combustible de base dans les réacteurs nucléaires français et notamment dans les réacteurs nucléaires à eau pressurisé (REP) actuels de III<sup>ème</sup> génération. Plusieurs autres combustibles ont cependant été testés au cours des soixante dernières années et ont donné des résultats satisfaisants. C'est notamment le cas du MOX (pour Mixed Oxide), l'oxyde mixte d'uranium plutonium. Le MOX utilisé actuellement dans certains REP possède une teneur en plutonium d'environ 9 % atomique. Ce combustible est aussi considéré comme le combustible de référence pour les réacteurs français à neutrons rapides à caloporteur sodium (RNR-Na) de IV<sup>ème</sup> génération, mais avec une teneur en plutonium comprise entre 25 et 30 % atomique. Il permettra ainsi de recycler le plutonium produit par les réacteurs actuels, et de réduire les déchets ultimes et limiter l'exploitation des ressources naturelles. La connaissance des propriétés et la maîtrise du comportement de ce combustible est important à la fois pour la sûreté et le contrôle des réacteurs nucléaires. L'utilisation et le développement des codes de performance dans l'industrie nucléaire permettent en effet de prédire le comportement du réacteur en condition normale et/ou accidentelle. Le CEA à travers sa plateforme PLEIADES développe plusieurs codes de performance, tels que GERMINAL, dédié à la simulation du combustible MOX pour RNR-Na, qui nécessitent d'être alimentés en données de base concernant les propriétés du combustible concerné. Du fait de la forte radio toxicité du plutonium contenu dans le MOX, et du coût élevé des expériences, les calculs à l'échelle atomique se présentent alors comme une voie alternative très intéressante dans la détermination des propriétés de ce matériau.

Nous avons utilisé pour la première fois dans ce travail la méthode de simulation moléculaire classique de type Monte Carlo [1] associé au potentiel de Cooper [2]. La méthode Monte Carlo a été utilisée avec deux algorithmes, l'un permettant l'échange des cations U et Pu dans la maille cristalline, et l'autre non. Ainsi, les propriétés structurales, thermodynamiques et mécaniques du combustible stœchiométrique  $U_{1-y}Pu_yO_2$  sur une large gamme de température (de 300 à 3300 K) et de teneur en plutonium (de 0 à 100% atomique) ont été calculées. L'analyse des fonctions de distribution de paires nous a permis d'étudier la répartition des cations U et Pu en fonction de la température ainsi que la distribution des configurations de tétraèdres de cations autour des oxygènes. Ceci nous a permis d'évaluer la pertinence des deux algorithmes utilisés. Nos résultats montrent que les deux approches donnent des bons résultats pour le calcul des propriétés thermodynamique du MOX. La différence entre ses deux approches apparaît principalement lors de l'analyse des structures atomiques. La dilatation thermique et la chaleur spécifique sont en bon accord avec la loi de Vegard et la recommandation de Fink jusqu'à 2300 K. Au delà de 2300 K, la loi de Vegard présente une faible déviation de maximum 0,02% sur le paramètre de maille tandis que la chaleur spécifique présente une augmentation brusque. Cette brusque augmentation apparaît aussi sur le coefficient de dilatation thermique dans la même plage de température. L'augmentation brusque illustre la transition de phase superionique de la solution suite à la fusion du sous réseau oxygène. Ce phénomène porte le nom de transition de Bredig. Cette transition apparaît dans notre cas à  $0,8 \cdot T_f$  ( $T_f$  = température de fusion) comme dans des études précédentes [3, 4]. Le bon accord entre nos résultats, l'expérience et les précédents calculs montre l'efficacité de la méthode Monte Carlo avec son algorithme d'échange de cations.

[1] N. Metropolis et al., *J. Am. Stat. Assoc.*, **44**, 335–341, (1949).

[2] M. W. D. Cooper et al., *J. Phys. Condens. Matter*, **26**, 105401, (2014).

[3] M. W. D. Cooper et al., *J. Phys. Condens. Matter*, **26**, 105401, (2014).

[4] H. Balboa, et al., *J. Nucl. Mater.*, **495**, 67–77, (2017).