

Evaluation de la composition chimique du combustible (U,Pu)O₂ irradié à fort taux de combustion dans les Réacteurs Rapides par calcul thermodynamique

Jean-Christophe DUMAS¹, Karl SAMUELSSON², Bo SUNDMAN³, Jérôme LAMONTAGNE⁴, Christine GUENEAU⁵

¹ CEA Cadarache, DEN/DEC/SESC, 13108 Saint-Paul-lez-Durance

² KTH Royal Institute of Technology, Nuclear Engineering, SE-106 91 Stockholm

³ OpenCalphad, 9 Allée de l'Acerma, 91190 Gif-sur-Yvette

⁴ CEA Cadarache, DEN/CAD/DEC/SA3C/LCPC, 13108 Saint-Paul-lez-Durance

⁵ CEA Saclay, DEN/DANS/DPC/SCCME, 91191 Gif-sur-Yvette

Résumé :

L'état chimique du combustible d'oxyde mixte d'uranium et de plutonium irradié à fort taux de combustion a été évalué à l'aide du logiciel OpenCalphad [1] et de la TAF-ID [2], base de données thermodynamiques internationale sur les matériaux nucléaires développée dans le cadre de l'OCDE/AEN. Ces simulations ont été effectuées afin d'évaluer l'intérêt d'introduire et de coupler un composant de thermo-chimie dans le code GERMINAL, dédié au calcul du comportement thermo-mécanique et physico-chimique du combustible des RNR (Réacteurs à Neutrons Rapides) en conditions d'irradiations nominales et incidentelles [3]. Les résultats obtenus ont été comparés aux examens post-irradiatoires (EPI) réalisés sur des échantillons de pastilles irradiées dans le réacteur rapide à caloporteur sodium Phénix. Les calculs ont permis de prédire les phases précipitées observées expérimentalement, ainsi que la présence d'autres phases secondaires. Lorsque cela a été possible, la composition chimique des phases obtenues a été comparée avec les valeurs issues des simulations. Les calculs basés sur la composition mesurée dans la phase fluorite (U,Pu,PF)O_{2±x} – matrice oxyde en solution avec ses produits de fission - ont été réalisés pour différentes valeurs de température et de teneur en oxygène initiale. Les calculs prédisent une formation plus importante de composés d'oxydes de PF en périphérie (zone plus froide) qu'au centre (zone plus chaude) de la pastille, en accord avec les observations expérimentales. En complément, les valeurs du potentiel chimique de l'oxygène ont été calculées et comparées aux données expérimentales obtenues pour des compositions similaires [4]. Nous déduisons de cette étude que les calculs sont suffisamment rapides et fiables pour utiliser ce type d'outil de calcul thermodynamique dans un code de performance combustible.

[1] B. Sundman, U. R. Kattner, C. Sigli, M. Stratmann, R. L. Tellier, M. Palumbo, S. G. Fries, « The OpenCalphad thermodynamic software interface », Computational Materials Science 125 (2016), 188-196.

[2] « TAF-ID homepage, 2018 ». URL: <https://www.oecd-nea.org/science/taf-id>.

[3] M. Lainet, B. Michel, J.-C. Dumas, K. Samuelsson, M. Pelletier, « Current status and progression of GERMINAL fuel performance code for SFR oxide fuel pins », IAEA-CN-245/222, FR17, Yekaterinburg, Russia, 2017.

[4] H.-J. Matzke, J.-P. Ottaviani, D. Pellottiero, J. Rouault, « Oxygen potential of high burn-up fast breeder oxide fuel », Journal of Nuclear Materials 160 (1988), 142-146.

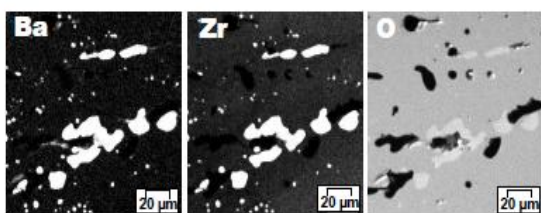


Fig. 1 : Cartographie X des éléments constitutifs des oxyde

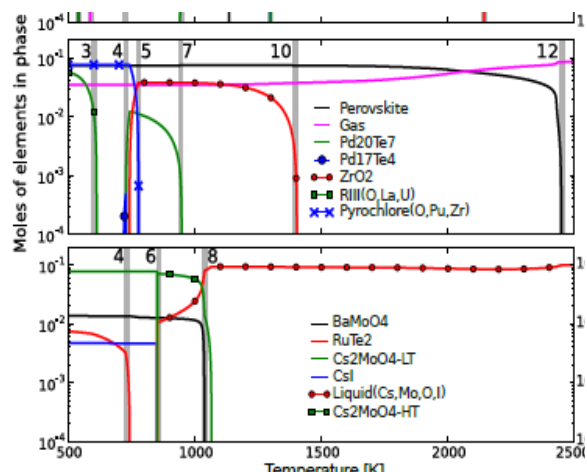


Fig. 2 : Phases chimiques en présence dans le combustible

phases précipitées de type pérovskite (Ba,Zr)O₃
radiale

calculées pour un domaine représentatif de température