



HAL
open science

Physique du relâchement des gaz de fission du combustible UO₂ irradié lors d'un transitoire thermique incidentel

Jimmy Losfeld

► **To cite this version:**

Jimmy Losfeld. Physique du relâchement des gaz de fission du combustible UO₂ irradié lors d'un transitoire thermique incidentel. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Paris-Saclay, 2023. Français. NNT : 2023UPAST128 . tel-04427995

HAL Id: tel-04427995

<https://theses.hal.science/tel-04427995>

Submitted on 31 Jan 2024

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.

Physique du relâchement des gaz de fission du combustible UO_2 irradié lors d'un transitoire thermique incidentel

Fission gas release physics from irradiated UO_2 fuel during an incidental thermal transient

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n°573 : interfaces : matériaux, systèmes, usages (INTERFACES)
Spécialité de doctorat : Physique
Graduate School : Sciences de l'ingénierie et des systèmes

Thèse Préparée au Laboratoire d'Analyse de la Migration des Radioéléments au
Commissariat à l'Energie Atomique.
direction de **Gianguido BALDINOZZI**, Directeur de recherche, CNRS, CentraleSupélec
l'encadrement de **Lionel DESGRANGES**, Directeur de recherche, CEA Cadarache
l'encadrement de **Yves PONTILLON**, Directeur de recherche, CEA Cadarache

Thèse soutenue à Cadarache, le 22 septembre 2023, par

Jimmy LOSFELD

Composition du Jury

Jean-Marc HEINTZ Directeur de recherche, ENSMAC - Bordeaux INP	Président
Pascal PILUSO Directeur de recherche, CEA Cadarache	Rapporteur
Loic FAVERGEON Directeur de recherche, Mines Saint-Étienne	Rapporteur
Thierry WISS Directeur de recherche, JRC Karlsruhe	Rapporteur
Aurélie GENTILS Chargé de recherche, Université Paris-Saclay	Examinatrice
Rodrigue LARGENTON Ingénieur de recherche, EDF R&D	Examineur

Remerciements

Mon parcours, un peu éloigné des standards, ne me destinait pas à l'exercice du doctorat. Finalement pourquoi pas ? Comme un défi lancé à moi-même, j'épluche début 2020 quelques propositions de thèses sur le site de l'INSTN et tombe sur un sujet « matériaux » dont l'intitulé me semble un peu moins obscur que les autres. Ma candidature déposée, je reçois un coup de téléphone d'un monsieur Desgranges qui m'indique que mon CV a retenu son attention. « Je ne suis pas sûr que ce sujet soit le plus pertinent pour vous, j'ai par contre un autre sujet à vous proposer où j'aurais besoin de quelqu'un d'un peu curieux ». Je saute sur l'occasion et signe mon contrat de thèse quelques mois après. La suite de cette histoire est inscrite dans ce manuscrit. La réalisation de cette thèse je la dois donc tout d'abord à la confiance que Lionel Desgranges, Yves Pontillon et Gianguido Baldinozzi ont placée en moi. Lionel et Yves m'ont accompagné au quotidien au cours de ces trois dernières années et nos discussions ont souvent largement dépassé le domaine scientifique. Cela a participé à l'excellente ambiance de travail dans laquelle j'ai pu évoluer. Je dois beaucoup à Lionel et Yves, à leur patience, à leurs conseils, à leur disponibilité et c'est donc pour moi très naturel de débiter mes remerciements par eux.

Cette excellente ambiance de travail je la dois aussi au laboratoire qui m'a accueilli. Au sein du LAMIR j'ai reconcentré des femmes et des hommes de très grandes qualités, d'une grande bienveillance, d'un grand professionnalisme et pas dénués d'humour ! J'ai adoré passer ces dernières années à apprendre d'eux, à travailler et rire à leurs côtés. Tous les nommer ici n'aurait pas beaucoup de sens, tant j'ai été marqué par chacune ou chacun d'entre à un moment dans mon parcours de thésard, et une simple énumération de leurs prénoms ne leur rendraient pas justice. Je souhaite néanmoins remercier tout particulièrement l'équipe TT, Sidonie, Marina, Jean-Christophe et Franck, sans oublier le camarade Kélian, qui ont activement participé à l'obtention de mes résultats et n'ont jamais rechigné à répondre à mes sollicitations. Je veux également saluer ici mes camarades « précaires », stagiaires et doctorants. Mon expérience au CEA aurait été bien moins agréable sans leur présence, leur solidarité et nos soirées. Il y a dans le lot quelques thésards encore en activité, camarades d'infortune, Hugo, Carlos et Maxime et je leur souhaite tout le succès qu'ils méritent dans leurs travaux. Je tiens aussi à remercier l'historien spécialiste du nucléaire Michaël Mangeon pour le temps qu'il m'a consacré et ses précieux conseils pour rédiger la partie historique et introductive de mon manuscrit.

Je ne peux pas ne pas évoquer ma famille, leur soutien indéfectible, leur gentillesse à toute épreuve. J'ai une chance immense d'avoir une famille aussi extraordinaire, j'espère leur dire suffisamment souvent et je veux profiter de ce petit paragraphe pour leur témoigner à nouveau ma plus profonde reconnaissance et tout mon amour. Finalement je veux remercier mes amis les plus proches, qui m'ont accompagné, conseillé et aussi supporté pendant cette aventure professionnelle, Théo, Lina et Denis. Ils sont des exemples pour moi, je puise mon énergie dans la leur et pour cela je leur dois aussi beaucoup. J'espère être à la hauteur de leur amitié.

En plus des belles rencontres, c'est ma vocation que j'ai rencontrée pendant ce doctorat. La vocation de m'engager professionnellement au sein de l'industrie nucléaire française et de contribuer, à mon échelle, à sa relance. Merci à tous ceux qui ont suscité en moi cette vocation.

TABLE DES MATIERES

Table des matières	3
Introduction générale	7
Chapitre 1 : Perspective historique de l'étude et approche bibliographique	9
1.1 L'historique de l'étude des accidents nucléaires	9
1.1.1 Les prémices d'une énergie nouvelle	9
1.1.2 L'essor de l'industrie nucléaire française	10
1.1.3 Naissance du principe de sûreté nucléaire.....	11
1.1.4 De l'accident grave à l'étude des événements déclencheurs	12
1.1.5 Le réacteur à eau pressurisée et son combustible	14
1.1.6 Le déroulement thermohydraulique d'un APRP	15
1.1.7 Le développement de la doctrine de sûreté nucléaire française	17
1.1.8 Les études de sûreté.....	18
1.1.9 La modélisation des phénomènes physico-chimiques et les codes de calculs.....	19
1.1.10 Des essais analytiques pour soutenir les travaux de modélisation	20
1.2 Généralités sur le combustible nucléaire	23
1.2.1 Conception du combustible REP standard	23
1.2.2 Le taux de combustion	26
1.2.3 Mécanismes de fission	27
1.2.4 Production de chaleur	30
1.2.5 Évolution de la céramique combustible jusqu'à 40 GWj/tU	31
1.2.6 Le relâchement des gaz de fission en réacteur en fonctionnement normal	33
1.3 Le combustible à fort taux de combustion	36
1.3.1 Évolution de la microstructure à haut taux de combustion	36
1.3.2 La pression des bulles de gaz dans le combustible à fort taux de combustion	41
1.4 Moyens expérimentaux et traitement des données expérimentales	43
1.4.1 Préparation d'un traitement thermique	43
1.4.2 Présentation de MERARG	45
1.4.3 Traitement du signal de mesure des relâchements gazeux	50
1.5 Le relâchement des gaz de fission en transitoire thermique accidentel	53
1.5.1 Localisation du gaz relâché.....	56
1.5.2 La fragmentation du combustible	57
1.6 Problématique de la thèse	59
Chapitre 2 : Description phénoménologique de la structure temporelle du relâchement des gaz de fission	60
2.1 Les incertitudes de déconvolution analytique	60
2.1.1 Incertitudes numériques	60
2.1.2 Incertitudes liées au débit de la ligne.....	61
2.2 Interpolation des données expérimentales	63
2.3 Lissage de la fonction d'interpolation	63
2.3.1 La réponse impulsionnelle du système	64
2.3.2 Définition d'un critère physique pertinent.....	65
2.3.3 Ré-échantillonnage de la courbe avec un pas de temps uniforme	66
2.3.4 Calcul de la déconvolution analytique.....	67
2.4 Présentation de la base de données	68

2.5	Phénoménologie des bouffées de relâchement.....	71
2.5.1	Le relâchement à 300°C : B1.....	72
2.5.2	Le relâchement entre 500 et 900°C : B2.....	73
2.5.3	Le relâchement au-delà de 1000°C : B3	74
2.6	Étude de l'impact d'un palier isotherme sur le relâchement de B3	77
2.7	Faits notables sur le phénomène du relâchement en trois bouffées	79
2.7.1	Une bouffée ne relâche pas une seconde fois	79
2.7.2	Le relâchement à froid	80
2.7.3	Relier relâchement gazeux et fragmentation du combustible	80
2.7.4	Impact du temps d'entreposage du combustible.....	81
2.7.5	Impact d'une atmosphère réductrice en traitement thermique.....	82
2.8	Conclusion du chapitre.....	83
Chapitre 3 : Modélisation de l'écoulement des gaz de fission dans le combustible en palier isotherme.....		84
3.1	conceptualisation des écoulements de gaz de fission dans le combustible en traitement thermique	84
3.1.1	Domaine de validité de la loi de Darcy	85
3.1.2	Séquençage du relâchement d'une bouffée	87
3.1.3	Simplification topologique du milieu d'écoulement	88
3.2	Équation d'Écoulement.....	90
3.2.1	Schéma et conditions aux limites de Dirichlet.....	91
3.2.2	application de l'équation d'écoulement au domaine géométrique défini.....	92
3.2.3	Étapes d'intégrations.....	93
3.2.4	Simplification de l'expression du temps caractéristique d'écoulements	94
3.2.5	Relier le flux de gaz aux données expérimentales.....	94
3.3	Ajustement du jeu de donnée	95
3.3.1	Ajustement de la dérivée logarithmique du relâchement	95
3.3.2	Détermination de l'intervalle d'ajustement et qualité d'ajustement	95
3.4	Conclusion du chapitre.....	97
Chapitre 4 : Étude et interprétations du comportement cinétique du relâchement des gaz de fission par bouffée.....		98
4.1	Ajustement du modèle sur la troisième bouffée de relâchement	100
4.1.1	Ajustement du modèle sur la troisième bouffée du TT 23.....	101
4.1.2	Ajustement du modèle sur la troisième bouffée du TT 79.....	103
4.2	Interprétations des paramètres d'ajustement de B3	106
4.2.1	Évaluation de la valeur de pression du réservoir de gaz associé à B3.....	106
4.2.2	Évaluation du volume du réservoir de gaz associé à B3.....	107
4.2.3	Évaluation du facteur de perméabilité.....	109
4.3	Ajustement du modèle sur la première bouffée de relâchement.....	111
4.3.1	Ajustement du modèle sur la première bouffée du TT 34	111
4.3.2	Ajustement du modèle sur la première bouffée du TT 35	112
4.3.3	Ajustement du modèle sur la première bouffée du TT 78	112
4.4	Interprétations des paramètres d'ajustement de B1	113
4.4.1	Évaluation de la valeur de pression du réservoir de gaz associé à B1.....	113
4.4.2	Évaluation du volume du réservoir de gaz associé à B1.....	114
4.4.3	Discussion sur l'origine de B1.....	114
4.5	Ajustement du modèle sur la deuxième bouffée de relâchement.....	115
4.5.1	Réalisation d'un traitement thermique dédié.....	115

4.5.2	Analyse des résultats.....	116
4.6	Conclusion du chapitre.....	117
5.	Conclusion generale.....	118
6.	Perspective pour la deuxième bouffée de relâchement	120
6.1	Discussion sur l'apport des résultats de MEXIICO dans l'interprétation de B2	120
6.2	Analyse des images enregistrées pendant le traitement thermique 78.....	122
	Annexe 1 : Une nouvelle méthode de déconvolution par « Forward fitting » pour analyser les relâchements de gaz de fission	125
	Bibliographie.....	131
	Table des illustrations	139
	Table des tableaux	143

« Ne demandez pas au chercheur ses résultats au sortir du laboratoire, mais les rêves qu'il avait en y entrant »

Gaston Bachelard, *La formation de l'esprit scientifique*, 1938

Liste des abréviations

ADAGIO : Analyse Discriminante de l'Accumulation de Gaz Intergranulaires et Occlus
AG : Accident Grave
ALCYONE : Code de comportement du combustible développé par le CEA
AMP : Accident Maximum Prévisible
APRP : Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (=LOCA)
ASN : Aurotié de Sûreté Nucléaire
BISON : Code de comportement du combustible développé par les Etats-Unis.
CEA : Commissariat à l'Energie Atomique
CV : Coefficient de Variation
DPC : Département de Physico-Chimie
EDF : Electricité de France
FGR : Fission Gas Release (=RGF)
GIEC : Groupe d'Experts Entergouvernemental sur l'Evolution du Climat
HBS : High Burn-up Structure
INES : International Nuclear Event Scale
INSTN : Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires
LAMA : Laboratoire d'Analyse des Matériaux Actifs
LAMIR : Laboratoire d'Analyse de la Migration des Radioéléments
LECA-STAR : Laboratoire d'Examens des Combustibles Actifs - Station de Traitement, d'Assainissement et de Reconditionnement
LOCA : Loss Of Coolant Accident (=APRP)
MEB : Microscope Electronique à Balayage
MERARG : Moyen d'Etude par Recuit et Analyse du Relâchement des Gaz
MOX : Mixed OXide fuel
NFIR : Nuclear Fuels Industry Research
NRC : Nuclear Regulatory Commission
OCS : Outil de Calcul Scientifique
ONU : Organisation des Nations Unis
PF : Produit de Fission
R&D : Recherche & Développement
REB/REP : Réacteur à Eau Bouillante / Réacteur à Eau Pressurisé
REQM : Racine de l'Erreur Quadratique Moyen
RGF : Relâchement de Gaz de Fission (=FGR)
RIA : Reactivity-initiated Accident
RNR : Réacteur à Neutron Rapide
SIMS : Spectrométrie de Masse des Ions Secondaires
TMI : Three Miles Island
TT : Traitement Thermique
ZAV : Zone Avant
ZAR : Zone Arrière

INTRODUCTION GENERALE

Le réchauffement climatique est indéniablement l'un des plus grands défis de notre époque. Le consensus scientifique, établi par le Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC) [1], sur l'origine et l'accélération de ce phénomène, pointe du doigt les émissions anthropiques de gaz à effet de serre.

Pour relever ce défi, la stratégie française s'appuie notamment sur l'objectif d'augmenter sa production d'électricité bas carbone [2]. À cet égard, l'énergie nucléaire est un atout considérable. Pour atteindre cet objectif, l'entretien et le renouvellement du parc de réacteur nucléaire d'EDF impliquent de continuer à imposer un haut niveau de sûreté de ses installations. Ce travail de thèse s'inscrit dans l'intention de contribuer à cet objectif.

Nos travaux, présentés dans ce manuscrit, se positionnent dans la filiation des études analytiques dans le cadre d'un accident de dimensionnement de référence des réacteurs à eau pressurisée d'EDF, et plus précisément du comportement du combustible oxyde pendant une séquence thermique incidentelle représentative d'un Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP). L'une des conséquences d'un tel accident sur le combustible UO_2 irradié est le relâchement des gaz de fission qui s'y sont accumulés tout au long de l'irradiation de base. Le relâchement de ces gaz peut participer à la fragilisation de la première barrière de confinement des radionucléides, il est donc indispensable de maîtriser la compréhension des mécanismes sous-jacents. Dans cet objectif, des travaux de modélisations suggèrent un mécanisme précis et prépondérant pour expliquer le relâchement des gaz de fission dans ces conditions : le mécanisme de décohérence des joints de grains. Le gaz s'écoulerait hors du combustible par des fissures formées par la fracturation des joints de grains.

Pour alimenter cette connaissance, nous avons étudié les traitements thermiques d'échantillons de combustible nucléaire irradié avec la plateforme MERARG au sein du Laboratoire d'Analyse de la Migration des Radioéléments (LAMIR) du Département d'Études des Combustibles du CEA Cadarache. MERARG a permis de disposer d'une large base de données de courbes de cinétique de relâchement des gaz de fission issue de très nombreux traitements thermiques effectués depuis les années 2000. Nous souhaitons dans ce manuscrit présenter une approche nouvelle pour interpréter ces cinétiques de relâchement au cours d'un traitement thermique dans MERARG et de vérifier leurs cohérences avec le mécanisme de décohérence des joints de grains proposé par les travaux de modélisation.

Dans le premier chapitre, nous aborderons l'étude du relâchement des gaz de fission hors du combustible nucléaire sous ses aspects historiques, de l'origine de l'industrie nucléaire aux différentes études de sûreté qui ont jalonné son développement. Nous présenterons ensuite l'état de l'art relatif aux évolutions microstructurales du

combustible nucléaire sous irradiation et à la formation, la migration et le relâchement des gaz de fission au sein du combustible UO_2 irradié. Nous présenterons également les moyens expérimentaux utilisés au cours de cette thèse, à savoir le four instrumenté MERARG et les méthodes de traitements des données de mesure de relâchement associées.

Dans le second chapitre, nous proposerons une amélioration du traitement des données de relâchements de gaz de fission dans MERARG, dans l'objectif d'adopter une méthode unique et robuste en vue de l'analyse de l'ensemble de la base de données des traitements thermiques réalisés dans MERARG sur les vingt dernières années. Nous dresserons également une description phénoménologique du relâchement par bouffée en nous appuyant sur l'exploitation des courbes de relâchement obtenues dans MERARG. Nous présentons quelques résultats de nouveaux traitements thermiques réalisés pendant la thèse qui viennent compléter la compréhension du phénomène de relâchement par bouffées.

Le troisième chapitre sera consacré au développement d'un modèle d'écoulement des gaz au sein du combustible. À partir de l'analyse phénoménologique du relâchement par bouffée, nous voulons proposer un modèle mécanistique, cohérent avec l'hypothèse de la fracturation des joints de grain et de l'écoulement des gaz hors des fissures ainsi formées, pour le confronter aux données expérimentales de relâchement des gaz de fission dans MERARG.

Le quatrième chapitre sera ainsi consacré à la confrontation entre la modélisation proposée et les données expérimentales des traitements thermiques afin d'en tester la validité.

CHAPITRE 1 : PERSPECTIVE HISTORIQUE DE L'ETUDE ET APPROCHE BIBLIOGRAPHIQUE

L'étude des accidents nucléaires graves et des rejets de radionucléides associés a été une préoccupation croissante depuis les premiers jours de l'industrie nucléaire. Dans ce premier chapitre, nous retracerons l'histoire de notre sujet de recherche, reviendrons sur ses origines, les découvertes scientifiques qui ont donné naissance à l'industrie nucléaire et les travaux de recherche sur la sûreté qui ont ponctué son développement. Les exigences de sûreté ont toujours été au centre des préoccupations des chercheurs et des industriels du nucléaire. Nous observerons que le scénario d'incident thermique que nous étudions a été conceptualisé aux États-Unis dès le début de l'industrie nucléaire. C'est ce type d'évènement initiateur qui est à l'origine de l'un des premiers accidents graves (c'est à dire avec fusion tout ou partie du cœur du réacteur) survenus dans une centrale nucléaire électrogène, qui a affecté la centrale américaine de Three Mile Island en 1979. Les conséquences de cet accident ont été multiples et ont notamment influencé les programmes de recherche et développement sur le comportement du combustible des réacteurs à eau pressurisée (REP) lors de séquence accidentelle, d'abord à l'échelle intégrale (en pile), puis à l'échelle analytique (hors pile). Notre étude est un produit de ces orientations, complétées par l'expérience acquise lors de l'exploitation des centrales nucléaires à l'échelle mondiale et nationale, par de nouveaux outils expérimentaux et par le développement de logiciels de calcul toujours plus performants. À l'issue de cet historique succinct qui retrace l'histoire de notre sujet de recherche, nous aborderons l'aspect bibliographique du comportement des gaz de fission dans le dioxyde d'uranium (UO_2).

1.1 L'HISTORIQUE DE L'ETUDE DES ACCIDENTS NUCLEAIRES

1.1.1 Les prémices d'une énergie nouvelle

La fin du XIXe siècle et le début du XXe ont été une période particulièrement stimulante pour la science, marquée par de nombreuses découvertes qui ont révolutionné la physique. En 1896, Henri Becquerel découvrit que les sels d'uranium émettaient des radiations [3]. L'année suivante, Marie Curie choisit ce sujet pour sa thèse de doctorat et reproduisit de manière quantitative les expériences de Becquerel [4]. Elle dévoila les propriétés ionisantes de ce rayonnement et, avec son mari Pierre Curie, découvrit les éléments chimiques en cause, redéfinissant cette propriété en tant que radioactivité naturelle [5]. Pour cette découverte, Henri Becquerel et les époux Curie partagèrent le prix Nobel de physique en 1903 [6]. C'est ensuite Ernest Rutherford qui, en 1899, établit que les radiations émises par l'uranium étaient de deux types : α et β [7]. Trente ans plus tard, James Chadwick découvrit le neutron en bombardant du béryllium avec des particules α , s'appuyant sur les travaux de Frédéric et Irène Joliot-Curie [8]. Ces derniers, au cours des deux années suivantes, se penchèrent sur les rayonnements gamma et les

neutrons produits dans plusieurs réactions nucléaires, découvrant ainsi la radioactivité artificielle [9]. Au début du XXe siècle, tous les ingrédients étaient réunis pour la découverte du processus de fission nucléaire, qui permet la libération d'une grande quantité d'énergie par la fission d'un noyau atomique « lourd » par un neutron.

La fission nucléaire induite a été décrite pour la première fois dans la revue *Naturwissenschaften* en décembre 1938 par les chimistes allemands Otto Hahn et Fritz Strassmann, avec la contribution majeure de Lise Meitner [10]. Plus tôt la même année, le physicien italien Enrico Fermi avait reçu le prix Nobel pour avoir démontré l'existence de nouveaux éléments radioactifs générés par le bombardement de neutrons, ainsi que pour sa découverte associée des réactions nucléaires déclenchées par des neutrons lents [11]. Ainsi, il n'est pas surprenant qu'en décembre 1942, Fermi, ayant émigré aux États-Unis pour fuir le fascisme italien, et ses collègues de l'université de Chicago soient à l'origine de la conception du premier réacteur nucléaire, accomplissant ainsi la première réaction en chaîne contrôlée de fission [12]. Cet événement a marqué la naissance d'une nouvelle industrie qui, après la Seconde Guerre mondiale, a suscité l'intérêt des États-Unis, de l'Union soviétique, du Royaume-Uni et de la France. Le 18 octobre 1945, le général de Gaulle a officiellement créé le Commissariat à l'Énergie Atomique en France, confiant sa direction à Frédéric Joliot-Curie et Raoul Dautry pour diriger les travaux de recherche et développement sur les applications de l'énergie nucléaire [13].

1.1.2 L'essor de l'industrie nucléaire française

Après la création du CEA en 1948, le premier réacteur nucléaire de conception française, la pile Zoé, voit le jour [14]. Suite à la construction de réacteurs de type UNGG (Uranium naturel graphite gaz, à finalité plutonigène), le CEA et Électricité de France (EDF) s'orientent vers l'exploitation de l'énergie nucléaire pour la production d'électricité dans les années 50. La décennie suivante est marquée par de nombreuses études, l'émergence de nouveaux concepts de réacteurs, et des débats scientifiques et techniques animés qui mènent à la période dénommée "guerre des filières", qui oppose les participants de la filière française Uranium naturel graphite gaz aux filières américaines à eau légère (REB et REP). Cet épisode culmine à la fin des années 60 et signale un tournant majeur dans l'histoire de l'énergie nucléaire française : le choix d'un parc nucléaire standardisé basé sur la technologie américaine à eau légère, le Réacteur à Eau Pressurisée (REP), sous licence de l'industriel Westinghouse [15]. Le choix d'une technologie américaine s'accompagnera *de facto* d'une forte influence de la doctrine de sûreté des États-Unis sur la doctrine française de l'époque.

À partir de 1970, les prix du pétrole commencent à augmenter, culminant avec la première crise pétrolière déclenchée par la guerre du Yom Kippour en 1973. Dans ce contexte géopolitique, le Premier ministre Pierre Messmer lance le premier programme nucléaire d'envergure, connu sous le nom de plan Messmer. Ce plan ambitieux requiert

l'engagement de l'ensemble de l'industrie française pour assurer sa crédibilité, avec l'objectif de construire six unités de réacteurs par an.

Parallèlement à l'aventure industrielle du REP en France, une autre filière a également suscité beaucoup d'intérêt scientifique et politique. On ne peut pas dresser un bref historique de la recherche et développement du nucléaire civil en France, comme nous le faisons, sans évoquer les réacteurs à neutron rapides (RNR). À la fin de 1956 une équipe de physiciens et d'ingénieurs du CEA s'attelèrent à étudier les RNR et plus particulièrement la filière refroidit au sodium [16]. Une R&D prolifique allait alors voir le jour pour donner naissance notamment aux réacteurs Rapsodie (1967), Phénix (1972), et Superphénix (1984). L'intérêt de la France et du CEA pour cette filière, en complémentarité d'un parc nucléaire de REP, porte sur la capacité de surgénération des RNR, c'est-à-dire la capacité pour le réacteur à produire plus de combustible qu'il n'en consomme [17] [18]. Comme les travaux de ce manuscrit se concentrent sur l'étude du comportement du combustible REP, nous ne détaillerons pas plus longuement la filière RNR.

1.1.3 Naissance du principe de sûreté nucléaire

En 1953, le Président américain Dwight D. Eisenhower inaugure le programme "Atoms for Peace" lors d'un discours à l'ONU [19]. Ce programme vise à partager les connaissances nucléaires avec les nations cherchant à développer l'énergie nucléaire civile, en échange de l'adoption de normes de contrôle et de surveillance. Dans ce contexte, l'ONU organise deux conférences internationales à Genève en 1955 et 1958, marquant ainsi l'amorce de la collaboration scientifique internationale en matière d'énergie nucléaire et la présentation de nombreux travaux sur la sûreté nucléaire. Ces conférences sont le point de départ de la sûreté nucléaire, et l'avance des États-Unis et du Royaume-Uni en la matière influence fortement la France.

En 1957, un rapport marquant de la Commission américaine de l'énergie atomique (USAEC), le WASH-740, propose la première approche déterministe de la sûreté nucléaire [20]. Il évalue les dommages maximums d'un accident grave (AG), c'est-à-dire en cas de fusion du cœur, d'un grand réacteur nucléaire sans enceinte de confinement. Les auteurs soulignent les immenses dangers potentiels dans le domaine nucléaire, non pas à cause du risque d'explosion, mais en raison de la possibilité de rejets et de dispersion de produits de fission et actinides accumulés pendant l'exploitation. L'accident majeur envisagé dans ce rapport correspond en termes d'initiation à une perte de refroidissement du cœur d'un réacteur à eau pressurisée. Bien que vivement critiqué pour ses hypothèses irréalistes, notamment l'absence d'enceinte de confinement, les pires conditions météorologiques et la libération dans l'atmosphère de la moitié du cœur du réacteur sous forme de poussière micrométrique, ce rapport s'appuie sur le principe de précaution, incarné par "l'Accident Maximum Prévisible ou Crédible" (AMP), et la nécessité d'utiliser les données des retombées des

essais atomiques (seules données physiques réelles à leur disposition). Malgré ces critiques, c'est sur la base de ces évaluations préliminaires et de cette approche de l'AMP que les premiers critères de sûreté nucléaire sont définis aux États-Unis, préfigurant la doctrine française.

Dans les années 70 aux États-Unis, l'opposition au nucléaire s'est renforcée, s'appuyant sur les résultats du rapport WASH 740. Pour résoudre ces débats et fournir une description plus réaliste et moins alarmiste des conséquences d'un accident nucléaire, les autorités américaines ont commandé en 1975 un nouveau rapport, le WASH 1400 [21]. Dirigé par le Professeur Norman Rasmussen du MIT, ce rapport a jeté les bases de l'approche probabiliste de la sûreté nucléaire. L'étude avait pour objectif d'identifier les séquences d'accidents potentielles dans les centrales nucléaires à eau pressurisée et d'estimer leur probabilité d'occurrence en utilisant la méthode des arbres d'événements.

Malgré les critiques, le rapport a conclu que les conséquences de tels accidents ne sont pas aussi désastreuses que celles présentées dans le rapport précédent, et que leur probabilité d'occurrence est très faible. Le rapport Rasmussen a confirmé qu'un défaut de refroidissement du cœur d'un réacteur nucléaire est le paramètre le plus déterminant en termes d'initiation d'une séquence d'accident grave. Cependant, il a fait une distinction notable : la cause la plus probable d'une perte de refroidissement du cœur n'est pas la rupture d'une conduite, mais la défaillance d'une valve de non-retour sur une partie du circuit primaire. Ce scénario théorique se produira pourtant 4 ans après la publication du rapport WASH 1400, menant à l'un des principaux accidents graves d'une centrale nucléaire électrogène.

1.1.4 De l'accident grave à l'étude des événements déclencheurs

Le 28 mars 1979, l'unité 2 de la centrale nucléaire à eau pressurisée de Three Mile Island (TMI) a subi un accident, classé niveau 5 sur l'échelle internationale des événements nucléaires (INES) [22]. Une défaillance dans le circuit secondaire a déclenché l'arrêt automatique du réacteur. Une vanne de décharge du pressuriseur du circuit primaire s'est alors bloquée, sans que l'opérateur en soit averti. Les défaillances mécaniques ont été exacerbées par les actions des opérateurs, inconscients qu'une perte de l'alimentation du circuit primaire était en cours. L'accident a entraîné une fusion partielle du réacteur. Malgré sa gravité, l'enceinte de confinement est restée intacte, limitant ainsi la libération de produits radioactifs dans l'environnement [23].

Comme le souligne la NRC dans un rapport technique relatif au comportement du combustible nucléaire en condition incidentelle [24], l'accident de Three Mile Island a permis de tirer de nombreux enseignements. L'amélioration de l'instrumentation et des procédures ont accru de manière significative la probabilité de mettre fin avec succès à l'événement initiateur de l'accident grave de TMI, à savoir l'Accident de Perte de

Réfrigérant Primaire (APRP). L'APRP est une séquence accidentelle hypothétique précise, défini dans le référentiel d'étude américain 10 CFR 50.46 de l'Atomic Energy Act de 1954 et notamment utilisé comme critère de dimensionnement à l'occasion des premiers réacteurs électronucléaires d'EDF sous licence Westinghouse [25] [26]. L'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN), définit les conditions de fonctionnement de référence dans lesquelles s'inscrivent les différentes catégories d'accidents mentionnés précédemment [27]:

- le fonctionnement normal (catégorie 1), où l'installation est maintenue dans les limites définies par ses spécifications techniques d'exploitation;
- les incidents (catégorie 2), de fréquence annuelle d'occurrence estimée par réacteur supérieure à 10^{-2} ;
- les accidents de catégorie 3, de fréquence annuelle d'occurrence estimée par réacteur supérieure à 10^{-4} et inférieure à 10^{-2} ;
- les accidents de catégorie 4, de fréquence annuelle d'occurrence estimée par réacteur inférieure à 10^{-4} :
 - Les accidents de dimensionnement
 - Les accidents de réactivité (RIA)
 - Les accidents de perte de réfrigérant primaire (APRP)

Les accidents graves, tels que ceux qui ont eu lieu à Three Miles Island en 1979 [23], Chernobyl en 1986 [28] et Fukushima en 2011 [28], sont des accidents hors dimensionnement.

Dans ce manuscrit nous nous intéresserons uniquement aux accidents de dimensionnement, et plus spécifiquement à l'APRP. L'accident de TMI, bien que ne rentrant pas dans les accidents de catégorie 4, a néanmoins été initié par un APRP. L'accident de TMI a ainsi largement stimulé les études expérimentales sur l'APRP [24], avec notamment un désir de comprendre ses dimensions thermohydrauliques à l'échelle du cœur du réacteur, thermomécanique à l'échelle des gaines des crayons combustibles et de la déformation qu'elles subissent pendant l'accident, ou encore à l'échelle du comportement des matériaux du combustible et de ses produits de fission.

Avant de rentrer dans le détail du déroulement d'un APRR et des études associés, il est nécessaire d'appréhender le fonctionnement général d'un réacteur à eau pressurisée (REP).

1.1.5 Le réacteur à eau pressurisée et son combustible

Entérinée par les choix politique et industriel du début des années 70, la France a adopté la technologie du REP pour l'ensemble de son parc nucléaire électrogène. De nos jours, la filière REP s'avère la plus répandue à travers le monde. Elle se caractérise par l'emploi d'eau pressurisée agissant à la fois comme fluide caloporteur et modérateur (Figure 1.1-1). On peut diviser très schématiquement un REP en trois parties indépendantes [29], ayant chacune un rôle distinct (Figure 1.1-1) :

- **Le circuit primaire** : Il utilise l'eau comme modérateur et comme fluide caloporteur sous une pression de 155 bar pour extraire la chaleur produite par la fission et la transporter vers le circuit secondaire. Il comprend principalement une cuve, des pressuriseurs, des pompes primaires et des générateurs de vapeur.
- **Le circuit secondaire** : Il contient de l'eau légèrement pressurisée qui se vaporise dans le générateur de vapeur, entraînant ensuite les turbines et produisant de l'électricité avec un rendement d'environ 35%.
- **Le circuit de refroidissement** : Il facilite la condensation de l'eau du circuit secondaire, utilisant l'eau d'un fleuve ou de la mer comme source froide selon la localisation du réacteur.

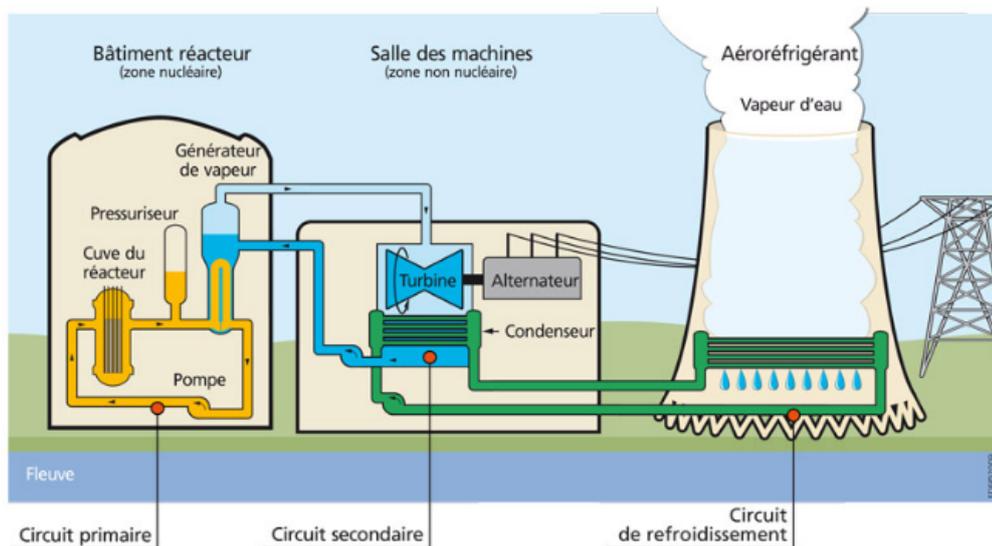


FIGURE 1.1-1 SCHEMA DE FONCTIONNEMENT D'UN REP

Les circuits primaire et secondaire sont fermés, n'échangeant aucune matière avec les autres. Seul le circuit tertiaire est ouvert sur l'extérieur.

Cette technologie est basée sur l'utilisation d'un type spécifique de combustible oxyde : le dioxyde d'uranium UO_2 ou le MOX $(U,Pu)O_2$. Les critères de choix des matériaux combustibles [17] reposent sur :

- Une stabilité géométrique suffisante en fonctionnement pour supporter les conditions de température et d'irradiation du réacteur (gonflement induit par les produits de fission)
- Des propriétés thermiques compatibles en fonctionnement, avec des marges suffisantes pour éviter la fusion à cœur.
- Une compatibilité chimique acceptable avec les matériaux de gaine et le fluide caloporteur.
- Une densité en atomes fissiles qui permet le bon contrôle de la criticité.
- Une bonne compatibilité avec les étapes du cycle du combustible.

En termes de compatibilité chimique, l'incompatibilité avec l'eau comme caloporteur élimine des matériaux d'uranium métallique ou de UPu allié, de carbure ou de nitrure. D'un point de vue neutronique, l'uranium naturel contient une trop faible proportion d'atomes fissiles (^{235}U), en conséquence l'eau légère, comme modérateur, absorbe trop de neutrons pour pouvoir maintenir une réaction en chaîne. Le compromis obtenu à partir de l'ensemble des exigences évoquées conduit au choix du combustible oxyde (UO_2) et à un alliage de zirconium pour la gaine. L' UO_2 est le combustible le plus utilisé dans les REP, malgré sa faible conductivité thermique, grâce à sa capacité à atteindre la criticité à partir d'un faible taux d'enrichissement. (entre 3 et 5%)

1.1.6 Le déroulement thermohydraulique d'un APRP

Après la brèche, l'arrêt automatique du réacteur se produit par la chute des barres de contrôle, mettant fin aux réactions de fission. Seule la puissance résiduelle du combustible demeure, c'est-à-dire la chaleur produite par le cœur suite à l'arrêt de la réaction de fission, générée principalement par la désintégration des produits de fission radioactifs. D'un point de vue thermohydraulique, le transitoire accidentel se déroule en quatre phases illustrées sur la Figure 1.1-2:

1. **Phase de décompression et de montée rapide en température** : Une première phase voit le chauffage de la gaine et du combustible sous l'effet de sa puissance résiduelle (10 à 20 W/cm). Le chauffage se produit dans une atmosphère de vapeur d'eau, avec une cinétique thermique de 10 à 20°C par seconde. Simultanément, la dépressurisation du circuit primaire expose la gaine à une pression interne due à l'hélium de remplissage du crayon combustible et à la libération supplémentaire des gaz de fission, pouvant entraîner des ballonnements locaux limitant le passage de l'eau à travers l'assemblage. Ce ballonnement est renforcé par la perte des propriétés mécaniques de la gaine (transition $\gamma \rightarrow \beta$ du Zr). De forts ballonnements peuvent entraîner un

tassement de la colonne fissile, accompagné d'une relocalisation de fragments de combustibles, modifiant le gradient axial de puissance dans le crayon. Par ailleurs, la gaine peut rompre pendant cette phase initiale ; dans ce cas, une partie des produits radioactifs disponibles dans le crayon est libérée dans le circuit primaire, essentiellement les gaz rares xénon et krypton.

2. **Palier de température sous vapeur d'eau** : Un palier de température s'établit ensuite, entre 900 et 1200°C, selon les crayons, et dure plusieurs dizaines de secondes. Ces conditions accélèrent l'oxydation externe de la gaine par la vapeur d'eau, une réaction exothermique qui entraîne la formation de zircon et la production d'hydrogène.
3. **Renoyage sous eau et refroidissement final du cœur** : Une phase de refroidissement brusque des crayons survient lors du renoyage du cœur par les systèmes de refroidissement d'urgence. Pendant cette phase finale, la gaine, fragilisée par l'oxydation, peut se rompre sous l'effet du choc thermique de la trempe, provoquant une libération additionnelle de produits de fission radioactifs par "lessivage" : gaz rares, mais aussi produits de fission volatils, tels que l'iode, le césium et le tellure. De fins débris de combustible peuvent également être transportés dans le circuit primaire.
4. **Gestion post-accidentelle** : les assemblages combustibles doivent être manipulés sans risque de rupture supplémentaire des crayons.

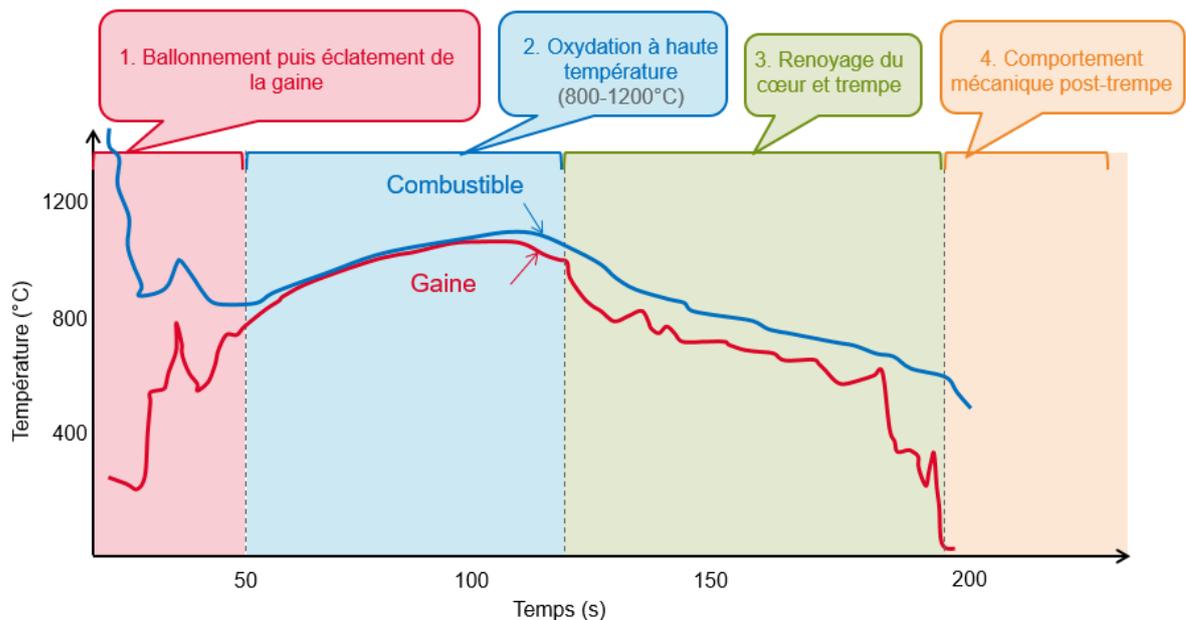


FIGURE 1.1-2 SCHEMA D'UN TRANSITOIRE DE TEMPERATURE DE LA GAINE ET DU COMBUSTIBLE, LORS D'UN ACCIDENT DE PERTE DE REFRIGERANT PRIMAIRE. CONSEQUENCES SUR LE COMPORTEMENT DU GAINAGE COMBUSTIBLE [30].

L'accumulation de gaz de fission dans la gaine concourt à son gonflement et son éventuelle rupture. Il s'agit d'un des critères importants qui doit également être évalué au regard du taux de combustion du combustible. C'est le relâchement de ces gaz de fission qui fait l'objet des travaux du présent manuscrit.

1.1.7 Le développement de la doctrine de sûreté nucléaire française

Comme décrit précédemment, EDF a adopté une technologie américaine, s'appuyant sur les standards de sûreté des États-Unis. Les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) français sont conçus selon une approche déterministe, dimensionnés pour une série d'incidents et d'accidents envisagés comme possibles. Cette approche suppose des hypothèses systématiquement pessimistes et a conduit à l'adoption du concept de "défense en profondeur", consistant à instaurer plusieurs niveaux de procédures et d'équipements afin de garantir le confinement des matières radioactives. La prise en compte du concept de défense en profondeur implique l'existence de 3 barrières de confinement des produits radioactifs contenus dans le cœur du réacteur :

- **La gaine** : Elle enveloppe les crayons de combustible et retient les produits de fission créés au sein des pastilles combustibles.
- **Le circuit primaire** : les crayons combustibles sont constamment refroidis par l'eau primaire qui circule en circuit fermé entre le cœur et les boucles des générateurs de vapeur. Le circuit primaire constitue une deuxième enveloppe capable de retenir la dispersion des produits radioactifs contenus dans le combustible si les gaines sont défailtantes.
- **L'enceinte de confinement** : elle est constituée par le bâtiment en béton qui abrite le circuit primaire.

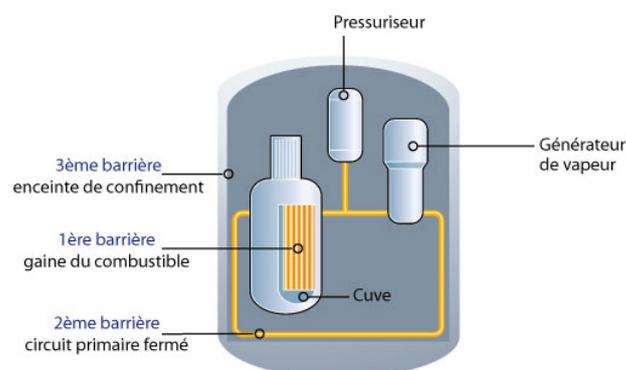


FIGURE 1.1-3 ILLUSTRATION DES TROIS BARRIERES DE CONFINEMENT DANS UN REP [31]

Comme nous l'avons précédemment évoqué, l'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire est le principal accident de référence pour dimensionner les principaux systèmes de sécurité.

1.1.8 Les études de sûreté

En France, l'exploitant est responsable de son installation et doit fournir la démonstration de sa sûreté. Afin de bénéficier d'éléments d'évaluation indépendants des exploitants et des constructeurs, les organismes de recherche des pays développant l'énergie nucléaire, tels que le CEA pour la France, conduisent leurs propres programmes de recherche. Suite à l'accident de Three Mile Island, les études de sûreté se réorientent vers des séquences accidentelles plus réalistes et physiques, comparées aux scénarios hypothétiques, s'éloignant ainsi du concept de l'AMP du rapport WASH 740. Pour l'APRP, l'attention se déplace de la rupture à double débatement vers des accidents impliquant des brèches de toutes tailles.

Le réacteur Phébus, une installation expérimentale emblématique située sur le site du CEA Cadarache, illustre parfaitement cette orientation de la recherche en matière d'accidents graves [30]. Entre 1979 et 1984, le premier programme expérimental, nommé "Phébus LOCA", visait à reproduire la courbe de température et de pression caractéristique d'un APRP originaire d'une rupture guillotiné de la branche froide du circuit primaire. Ces conditions expérimentales étaient appliquées à des barres de combustible d'un REP.

En 1984, un second programme est lancé : "Phébus CSD" pour Cœur Sévèrement Dégradé. L'objectif est d'étudier les phénomènes physiques intervenant dans la dégradation d'un cœur lorsque sa température dépasse 1200°C jusqu'à atteindre la température de fusion.

En 1989, un troisième programme, "Phébus PF" pour Produits de Fission, est mis en place. Il reproduit un modèle réduit de réacteur REP de 40 MW avec un dispositif d'essai instrumenté simulant une partie du circuit primaire.

À l'échelle internationale, les premières expériences sur l'APRP ont également été réalisées à échelle intégrale ou semi-intégrale, c'est-à-dire reproduite à l'échelle d'un cœur de réacteur ou de barres de combustible entières, dans des installations dédiées. On peut notamment citer :

- Les essais réalisés dans le réacteur Forschungsreaktor 2 (FR2) à Karlsruhe, visant à étudier l'impact du taux de combustion ou encore de la pression interne du crayon sur le relâchement des produits de fission [32].
- Les essais PBF-LOC de l'Idaho National Engineering Laboratory (INEL), visant à étudier la déformation de la gaine [33].
- Les essais réalisés dans le réacteur Halden de l'Institute for Energy Technology (IFE) tel que les essais IFA650, visant à étudier en particulier la thermohydraulique pendant un APRP [34].

- Les essais BTF dans le réacteur NRU (National Research Universal) pour les combustibles CANDU (CANada Deuterium Uranium), visant à étudier le relâchement et le transport des éléments gazeux et volatils afin d'éprouver les performances des codes ELOCA [35], FACTAR [36], SOURCE [37] et SOPHAEROS [38].

1.1.9 La modélisation des phénomènes physico-chimiques et les codes de calculs

Les essais Phébus des années 80 poursuivaient deux objectifs : établir des critères de sûreté explicites et valider les codes de comportement du combustible utilisés pour l'analyse de sûreté. Les dernières décennies ont alors en effet été marquées par des progrès majeurs qui ont radicalement transformé les possibilités de calcul scientifique. Le développement des capacités de calcul informatique et la généralisation du numérique ont systématisé le recours à la modélisation et au développement de codes de calcul, et ce, dans de nombreux domaines, y compris le nucléaire.

Le CEA a développé des outils de modélisation allant de l'échelle atomique à l'échelle macroscopique, s'appuyant sur des méthodes numériques performantes et la maîtrise d'outils de caractérisation correspondants [39]. Ces modèles, reliés entre eux par des méthodes appropriées et validés par confrontation avec l'expérience, fournissent aux exploitants les outils nécessaires pour assurer en toute situation le bon fonctionnement de leurs installations.

Aujourd'hui, les outils de calcul scientifique (OCS) sont également reconnus dans la réglementation française en matière de sûreté nucléaire comme un support pour démontrer la sûreté que les exploitants doivent garantir [40] (Arrêté du 7 février 2012 fixant les règles générales relatives aux installations nucléaires de base).

Au fil du temps, la recherche s'est structurée autour de deux axes : les activités expérimentales, qui permettent d'observer des phénomènes physico-chimiques et de créer des bases de données caractérisant ces phénomènes, et les activités de modélisation et de simulation qui, en s'appuyant sur les travaux expérimentaux et des méthodes numériques performantes, reproduisent le comportement d'un objet spécifique dans un contexte précis, comme le comportement du combustible nucléaire en condition d'APRP. Cette relation symbiotique entre modélisation et expérimentation est illustrée sur la Figure 1.1-4.

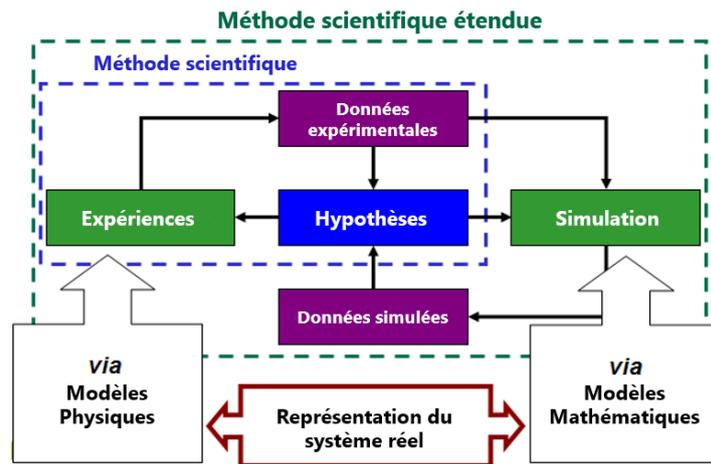


FIGURE 1.1-4 SCHEMA DES RELATIONS ENTRE TRAVAUX DE MODELISATIONS ET TRAVAUX EXPERIMENTAUX

1.1.10 Des essais analytiques pour soutenir les travaux de modélisation

Nous avons vu que les premiers travaux expérimentaux en matière de sûreté sur l'étude des accidents graves se sont largement appuyés sur des études intégrales et semi-intégrales. Comme le souligne l'historien et ingénieur Cyrille Foasso dans sa thèse [41], le CEA a rapidement adopté une approche de recherche plus fine, complémentaire à l'approche intégrale. Bien que cette démarche ne soit pas exclusivement française, les chercheurs du CEA se sont attachés, depuis leurs premières études des années 60, à comprendre plus précisément les phénomènes fondamentaux régissant notamment le comportement des matériaux nucléaires, adoptant une approche qualifiée de plus analytique. De nos jours, on évoque également les études à effet séparé pour qualifier les travaux et les moyens expérimentaux se concentrant sur des phénomènes isolés. Ces travaux visent à améliorer la compréhension analytique de chaque phénomène intervenant durant l'exploitation d'un réacteur nucléaire ou, dans notre cas, en situation accidentelle, afin de soutenir et de valider les travaux de modélisation. Cette philosophie guide le présent travail de thèse.

Au cours des quarante dernières années, de nombreux essais analytiques ont été réalisés à travers le monde, en soutien aux essais intégraux pour la compréhension des APRP :

- Le programme REBEKA au KfK, étudiant la déformation de la gaine lors de la phase de renoyage du cœur [42].
- Les essais menés par le JAERI, axés notamment sur l'effet de l'atmosphère oxydante apportée par la vapeur sur le comportement du combustible [43].
- Les essais MRBT conduits à Oak Ridge, destinés à étudier les interactions « crayon contre crayon » sur le comportement à la rupture de ces derniers [44].

- Les essais russes PARAMETR-M et TEFSAI-19 pour étudier les contraintes de chargement sur les crayons et la déformation de la gaine lors d'un APRP [45].
- Le programme NRC LOCA à Studsvik relatif à l'étude de la fragmentation du combustible et des problématiques de mobilité et de relocalisation des fragements [46].

Historiquement, les premières recherches relatives au comportement du combustible lors d'un scénario accidentel de type APRP se sont concentrées sur du combustible vierge ou faiblement irradié. Cependant, à l'aube des années 2000, l'orientation de la recherche a évolué vers l'étude des combustibles à haut taux de combustion, notamment dans l'objectif d'améliorer ses performances. Nous nous intéresserons tout particulièrement aux études analytiques relatives à la libération de gaz de fission associée un transitoire thermique représentatif d'un APRP. À cet égard nous pouvons citer les essais analytiques suivant :

- Les essais du Oak Ridge National Laboratory sur un système dédié, baptisé « Fuel heating and visualization system » (FHVS) [47]
- Le four instrumenté KUFA au JRC/ITU [48]
- Le programme de recuit en cellule de Knudsen couplé à un spectromètre de masse également à l'Institute for Transuranium Elements (ITU) [49]
- Les campagnes de traitements thermiques réalisés dans les fours MEXIICO [95] et MERARG au CEA [50]

C'est sur résultats des campagnes menées dans MERARG que reposent nos travaux, nous présenterons donc en détail cette installation. À la fin des années 90, des équipes du CEA ont développé au Laboratoire d'Analyse des Matériaux Actifs (LAMA) de Grenoble, un four instrumenté capable de reproduire le transitoire thermique d'un APRP à l'échelle d'une pastille de combustible REP. L'objectif de ce four est de mesurer spécifiquement la cinétique de libération des gaz de fission lors d'un traitement thermique sur un échantillon de combustible irradié via un spectromètre gamma qui mesure en ligne les relâchements gazeux. Cette installation permet ainsi d'obtenir des courbes de relâchements très précises et dispose d'une des plus importantes bases de données de traitements thermiques sur combustible irradié. C'est dans cette installation qu'a été lancé le programme GASPARD [51], qui a fourni des résultats significatifs sur la compréhension des mécanismes de libération de gaz de fission lors d'un transitoire thermique représentatif d'un APRP. Ces résultats seront évoqués dans le travail bibliographique de la seconde partie de ce chapitre. Ce travail de thèse se basera sur les résultats de la campagne GASPARD, ainsi que sur l'ensemble des campagnes menées et des différents traitements thermiques réalisés dans le four du LAMA et son successeur, le four MERARG, installé depuis 2004 dans les laboratoires chauds du CEA Cadarache, qui sera présenté en détail à la section 1.4.2 du présent manuscrit.

Dans cette première section du chapitre, nous avons tracé les contours de l'histoire de l'industrie nucléaire, abordé les choix scientifiques et techniques de la France et les recherches du CEA en lien avec l'un des accidents majeurs étudiés, l'APRP. Le sujet de cette thèse s'inscrit dans la continuité de cette politique de recherche, aligné sur les travaux expérimentaux de nature analytique qui visent à mieux comprendre le phénomène de libération des gaz de fission du combustible nucléaire lors d'un transitoire thermique accidentel. La seconde partie de ce chapitre sera dédiée à dresser un état des lieux de nos connaissances scientifiques relatives à notre sujet. Nous aborderons tout d'abord les généralités concernant le combustible nucléaire UO_2 , sa conception et ses caractéristiques. Nous présenterons ensuite les propriétés fondamentales des gaz de fission au sein du combustible UO_2 uniquement (nous n'aborderons pas le sujet des combustibles MOX), puis nous analyserons leur comportement (précipitation, accumulation, mobilité) et leur impact sur la microstructure du combustible pendant l'irradiation en réacteur (inventaire, localisation, taille et pression des bulles, etc.). Enfin, nous concluons cette section bibliographique avec des résultats marquants de campagnes de traitements thermiques sur l' UO_2 .

1.2 GENERALITES SUR LE COMBUSTIBLE NUCLEAIRE

1.2.1 Conception du combustible REP standard

Le dioxyde d'uranium (UO_2) utilisé dans les REP est obtenu par frittage de poudre de dioxyde d'uranium enrichi selon un processus dit de métallurgie des poudres [52] [37] [53]. Ce processus commence par la conversion sèche de l'hexafluorure d'uranium (UF_6) en poudre d' UO_2 enrichie en uranium-235 (^{235}U). Cette poudre est ensuite mélangée avec une quantité définie de poudre d' U_3O_8 et de produits porogènes pour contrôler la densité du produit final. La poudre est alors compactée puis frittée pour former des pastilles combustibles. Ces différentes étapes sont schématisées dans la Figure 1.2-1.

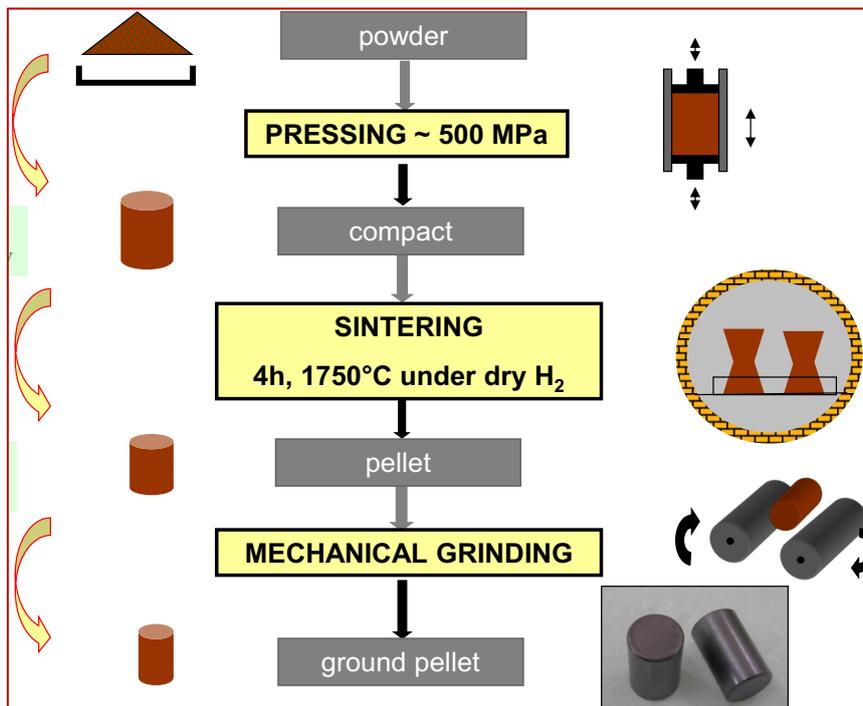


FIGURE 1.2-1 ILLUSTRATION DU PROCEDE DE FABRICATION DES PASTILLES D' UO_2

La production de ces pastilles est minutieusement surveillée pour atteindre des caractéristiques idéales, telles qu'une microstructure homogène sans défauts, une densité d'environ 95% de la densité théorique de l' UO_2 et une teneur en ^{235}U comprise entre 3% et 5%. La taille des grains dans la microstructure des pastilles standards de UO_2 est d'environ $10\ \mu m$. Un exemple de microstructure standard est montré sur la micrographie de la Figure 1.2-2.

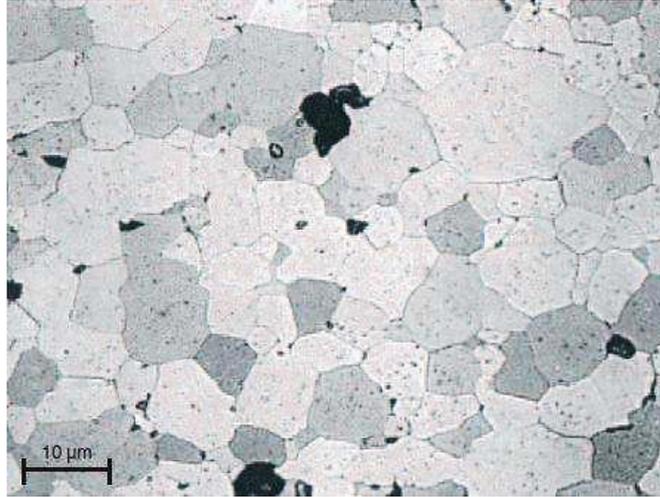


FIGURE 1.2-2 MICROGRAPHIE D'UNE CERAMIQUE UO_2 APRES ATTAQUE CHIMIQUE REVELANT LES GRAINS [53]

La procédure de compactage et de frittage donne naissance à des pastilles cylindriques de 13,5 mm de haut et de 8,2 mm de diamètre. Ces pastilles, après avoir subi des opérations de chanfreinage et d'évidement, peuvent accommoder les déformations qui affecteront le combustible pendant l'irradiation de base. Ces pastilles d'uranium constituent la base des crayons combustibles, illustrés en Figure 1.2-3 et Figure 1.2-4. Les crayons sont fabriqués en empilant des pastilles à l'intérieur d'une enveloppe cylindrique creuse, formant la paroi du crayon combustible. Cette enveloppe est conçue pour contenir le matériau nucléaire (première barrière de confinement), faciliter le transfert d'énergie et servir de pièce structurale. L'enveloppe des crayons REP est faite d'un alliage de zirconium de 570 μm d'épaisseur. Le tube constitué par la gaine a initialement un diamètre externe de 9,5 mm, et un diamètre interne de 8,36 mm, soit un jeu initial d'environ 0,16 mm par rapport au diamètre des pastilles.

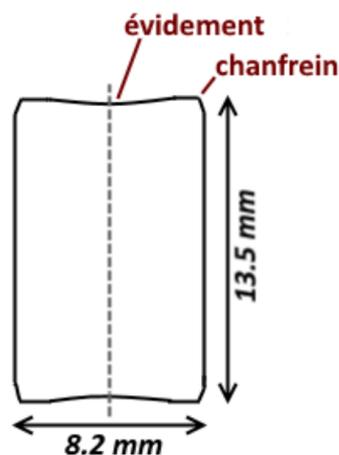


FIGURE 1.2-3 PASTILLE COMBUSTIBLE STANDARD

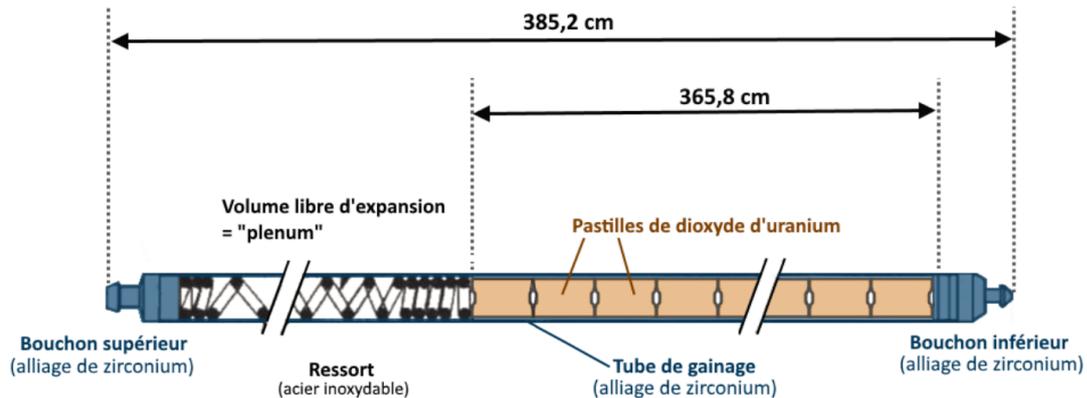


FIGURE 1.2-4 SCHEMA D'UN CRAYON COMBUSTIBLE (DIMENSIONS REP 900 MW) [54].

Les crayons sont ensuite assemblés avec des éléments de structures afin de former un assemblage combustible. Chaque assemblage combustible est composé de 264 crayons et de 24 tubes-guides. Ils sont disposés dans une structure quadrillée (17×17) permettant la circulation de l'eau. Cet arrangement géométrique facilite la dissipation de la chaleur générée par la fission. Les assemblages REP sont constitués d'une structure comprenant un pied, des embouts inférieurs et supérieurs et des tubes guides sur lesquels sont fixées les grilles de maintien des crayons combustibles. Une vue schématique est représentée sur la Figure 1.2-5. La section de l'assemblage mesure 214×214 mm². Le nombre d'assemblages par cœur dépend de la puissance du réacteur, les trois plus communs en France étant les paliers REP de 900 MW, 1300 MW et 1450 MW, dont les cœurs sont respectivement constitués de 157, 193 et 205 assemblages. Pour le palier 900MW les assemblages mesurent 4 058 mm, contre 4 796 mm pour les paliers plus récents.

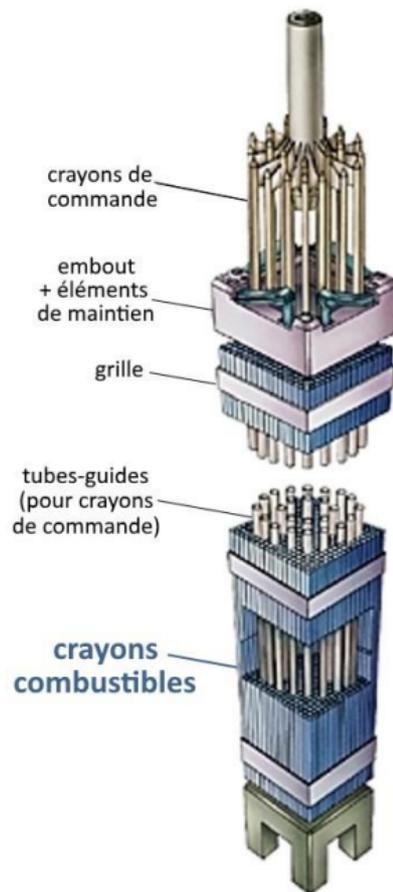


FIGURE 1.2-5 REPRESENTATION SCHEMATIQUE D'UN ASSEMBLAGE COMBUSTIBLE

1.2.2 Le taux de combustion

Ainsi constitués les assemblages sont ensuite insérés dans le cœur du réacteur, où ils restent généralement pendant quatre à cinq cycles. Un cycle correspond à la durée entre deux arrêts du réacteur (aussi appelé arrêt de tranche) pour la maintenance et le rechargement en assemblages neufs et le déchargement des assemblages usagés. Cela dure généralement de 12 à 18 mois, suivant le mode de gestion du cœur [29].

Deux paramètres clés permettent d'évaluer l'irradiation du combustible UO_2 : le taux de combustion et l'historique de la puissance linéique « vue » par le combustible. Le taux de combustion correspond à une quantité d'énergie produite par tonne de combustible, exprimé en GW_j/t_U . La puissance linéique, qui dépend également du mode de gestion, est utilisée pour décrire l'activité fissile qui mène à ce taux de combustion, mesurée en W/cm . Un exemple d'historique de puissance linéique d'un crayon combustible en réacteur est illustré en Figure 1.2-6 sur 5 cycles. Les crayons ont une puissance linéique moyenne de 150 à 300 W/cm en régime nominal. Les premiers cycles dégagent plus de puissance que les derniers, avec des puissances linéiques moyennes d'environ 250 W/cm au début et inférieures à 200 W/cm à la fin. Cette différence est due à l'épuisement progressif de l'isotope fissile ^{235}U , partiellement

compensé par la formation de plutonium (Pu) à partir de la transmutation de l'238U [55].

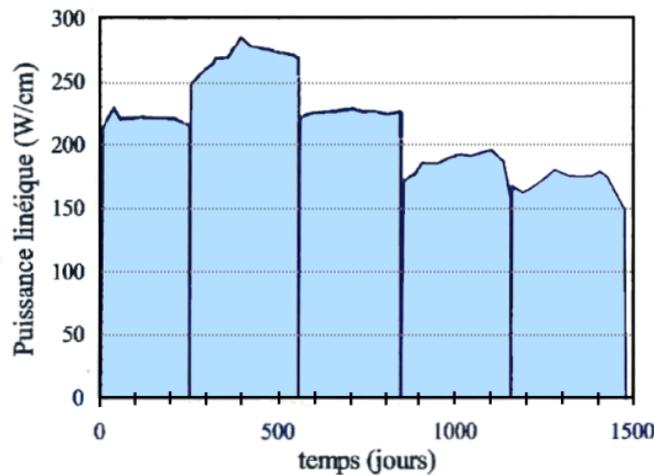


FIGURE 1.2-6 EXEMPLE TYPE DE L'HISTORIQUE DES CYCLES DE PUISSANCE LINEIQUE DANS UN COMBUSTIBLE UO_2 , EXPLOITE EN REACTEUR EDF [55]

1.2.3 Mécanismes de fission

L'exploitation du combustible nucléaire repose sur l'énergie produite par la fission d'atomes lourds, induite par un flux de neutrons dans un réacteur. Ces neutrons doivent être modérés, par de l'eau légère dans un REP, pour augmenter la probabilité d'interaction avec un noyau fissile. Ces neutrons modérés, également appelés neutrons thermiques, induisent une réaction de fission lorsqu'ils interagissent avec un élément fissile, par exemple l'235U (Figure 1.2-7).

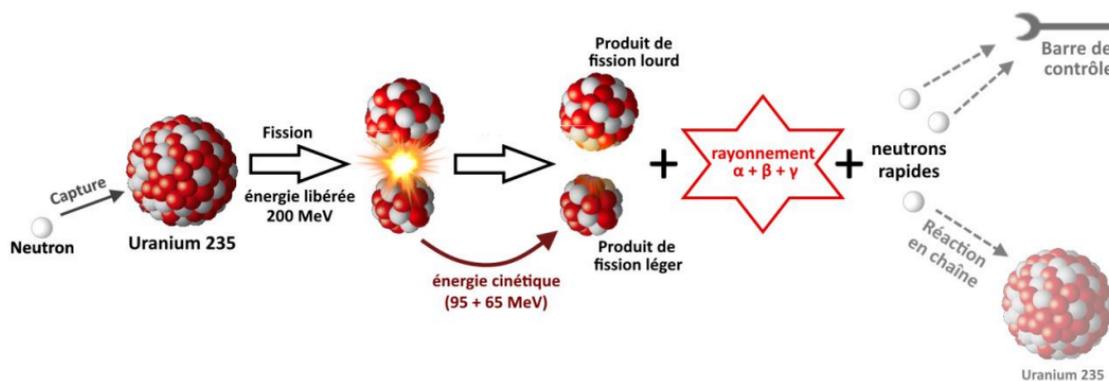


FIGURE 1.2-7 SCHEMA D'UNE REACTION DE FISSION

De cette réaction résultent généralement deux fragments de fission (plus rarement trois fragments), issus de la division du noyau d'uranium : un lourd et un léger. Chaque réaction de fission libère environ 200 MeV d'énergie, dont 80% sous forme d'énergie cinétique des produits de fission [17]. En moyenne, 95 MeV sont transférés au produit de fission lourd et 65 MeV au produit léger. Le reste, soit environ 40 MeV, se présente

sous forme de rayonnements (β , γ , neutrons et neutrinos/antineutrinos). L'essentiel de cette énergie est récupéré sous forme de chaleur.

Les produits de fission initialement créés par la réaction sont très instables pour la plupart, avec des demi-vies allant de quelques millisecondes à quelques heures. Ils produisent par la suite, par réactions et cascades de désintégrations successives, un ensemble d'atomes stables, car ils s'accumulent de manière durable dans le combustible actif.

Environ 30% des fissions génèrent un produit de fission gazeux indirect, soit environ 15% de tous les produits de fission créés, tels que le xénon et le krypton. Les éléments chimiques observables dans le combustible UO_2 irradié sont représentées dans le Tableau I-2.1, après refroidissement pendant six mois, et dans la Figure 1.2-8 pour un UO_2 irradié à $45GW_j/t_U$ [17].

TABLEAU 1.2-1 PROPORTION MASSIQUE DE PRODUITS DE FISSION GENERES PAR FISSION DE L'URANIUM 235, DANS UN UO_2 EN REP [17]

	Espèce chimique	Symbole	Produits de fission (% massique)
Gaz	Krypton	Kr	1,1
	Xénon	Xe	12,7
Volatils	Césium	Cs	11,0
	Iode	I	0,6
	Tellure	Te	1,4
	Rubidium	Rb	1,0
Métaux (inclusions)	Ruthénium	Ru	6,9
	Palladium	Pd	3,6
	Technétium	Tc	2,3
	Rhodium	Rh	1,2
Mixte \updownarrow	Molybdène	Mo	9,6
Oxydes insolubles (inclusions)	Baryum	Ba	4,4
	Strontium	Sr	2,6
Mixte \updownarrow	Zirconium	Zr	10,4
Oxydes solubles	Cérium	Ce	7,7
	Yttrium	Y	1,4
	Néodyme	Nd	11,1
	Praséodyme	Pr	3,2
	Lanthane	La	3,5
	Samarium	Sm	2,0
Autres éléments			2,3

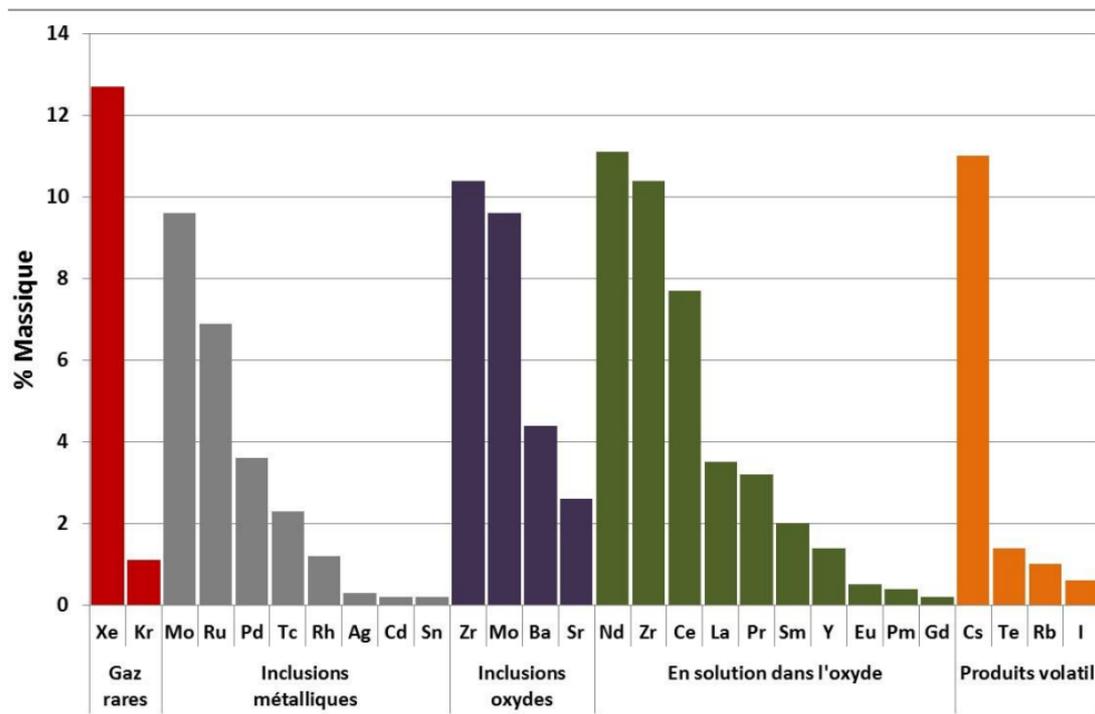


FIGURE 1.2-8 TAUX DE CREATION DES PRINCIPAUX PRODUITS DE FISSION EN REP PAR LA FISSION D'235U POUR UN UO₂ DE 45 GW_j/t_U ET ENRICHÉ A 4,25% EN 235U [17]

Le néodyme, produit en grande quantité, ne diffuse pas sensiblement dans le combustible au cours de l'irradiation. Sa concentration constitue ainsi un indicateur du taux de combustion local et de la quantité de produits de fission créés localement [56]. La répartition des isotopes du xénon et du krypton est présentée dans le Tableau I-2.2 pour un refroidissement de six mois à deux taux de combustion différents [17]. Les proportions de krypton et de xénon varient peu avec le temps de refroidissement, seul l'isotope radioactif ⁸⁵Kr diminue, se désintégrant en ⁸⁵Rb avec une demi-vie d'environ 10,74 ans.

TABLEAU 1.2-2 PROPORTION MASSIQUE DES PRINCIPAUX ISOTOPES DE XENON ET DE KRYPTON, DANS LE COMBUSTIBLE REP [17]

	Pour 10 GWj/t _U	Pour 60 GWj/t _U
Krypton	⁸² Kr à 0,04%	⁸² Kr à 0,27%
	⁸³ Kr à 13,55%	⁸³ Kr à 9,99%
	⁸⁴ Kr à 27,08%	⁸⁴ Kr à 31,67%
	⁸⁵ Kr à 7,11%	⁸⁵ Kr à 6,18%
	⁸⁶ Kr à 52,22%	⁸⁶ Kr à 51,89%
Xénon	¹²⁸ Xe à 0,01%	¹²⁸ Xe à 0,07%
	¹³⁰ Xe à 0,02%	¹³⁰ Xe à 0,21%
	¹³¹ Xe à 10,63%	¹³¹ Xe à 6,98%
	¹³² Xe à 17,92%	¹³² Xe à 22,23%
	¹³⁴ Xe à 29,98%	¹³⁴ Xe à 28,13%
	¹³⁶ Xe à 41,45%	¹³⁶ Xe à 42,38%

1.2.4 Production de chaleur

Dans un réacteur, la fission de noyaux lourds affecte le combustible de différente manière. Elle génère plusieurs centaines de types de nucléides, majoritairement radioactifs et à courte durée de vie, ainsi que de l'énergie, principalement sous forme d'énergie cinétique des produits de fission, mais aussi de rayonnements α , β et γ .

L'énergie cinétique des produits de fission se dissipe sous forme de chaleur lors de l'implantation des produits de fission dans le matériau. Ce processus d'implantation se fait par "recul" des produits de fission dans le matériau sur une distance de 5 à 10 μm et conduit à la création d'un grand nombre de défauts, dont la recombinaison dépend de la température du combustible. Le sillage énergétique laissé par cette implantation est appelé "pointe de fission" [57].

La distribution de température résultant de cette production de chaleur n'est pas homogène dans la pastille. Le gradient de température dépend de la puissance linéique du combustible. L'énergie dissipée dans le matériau et les conditions d'échange avec le fluide caloporteur à la surface de la gaine génèrent des températures élevées et un gradient thermique radial dans le combustible (Figure 1.2-9 [58]). La différence de température entre le centre d'une pastille et sa périphérie est de l'ordre de 500 à 700 °C. Cette différence de température varie fortement au cours de l'irradiation en raison de plusieurs facteurs, notamment des variations de puissance, de la diminution de la conductivité thermique, de la réduction de l'espace entre la pastille et la gaine et de la formation de couches oxydées à la surface de la gaine [59] [60].

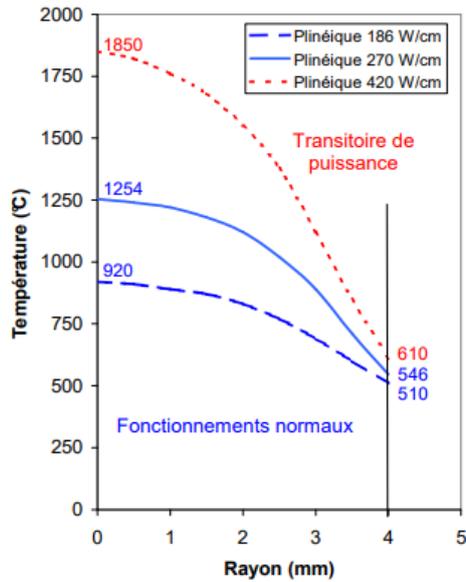


FIGURE 1.2-9 REPRESENTATION DU GRADIENT THERMIQUE RADIAL DANS UNE PASTILLE COMBUSTIBLE [58]

1.2.5 Évolution de la céramique combustible jusqu'à 40 GW_j/t_U

De nombreux phénomènes affectent l'évolution du combustible en irradiation de base, dans cette section nous nous attacherons à présenter ceux qui ont un impact important pour les gaz de fission, qui font l'objet de ce travail de thèse.

Comme toutes les céramiques, les pastilles de combustible présentent un comportement fragile jusqu'à une température de 1400°C. Des dilatations différentielles entre le centre et la périphérie génèrent des contraintes tangentielles de traction. Ces contraintes dépassent généralement la limite de résistance à la rupture du matériau lors de la première montée en puissance, provoquant une fissuration radiale et transversale de la pastille (Figure 1.2-10).

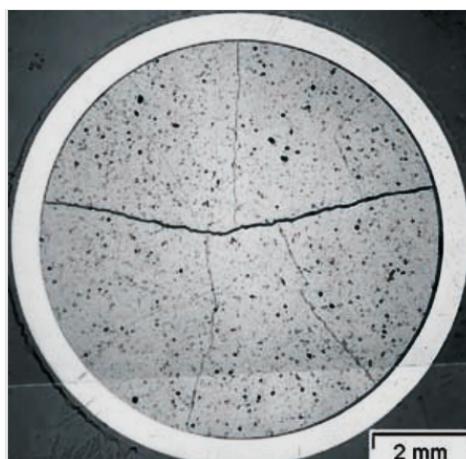


FIGURE 1.2-10 COUPE RADIALE D'UN COMBUSTIBLE UO₂ IRRADIÉ 1 CYCLE, VISUALISATION DES FISSURATIONS DUES A L'IRRADIATION [54].

Sous l'effet des contraintes élastiques dues au champ de température, les pastilles adoptent une forme dite "de diabolo" (Figure 1.2-11). Dès le début de l'irradiation, l'interaction des pointes de fission avec les pores du matériau disperse des lacunes dans le réseau. Leur diffusion vers les joints de grains entraîne une densification globale du matériau, visible par une diminution notable de la densité des petits pores (<2 à 3 μm). Ce phénomène, dépendant de la microstructure initiale, provoque une variation de densité et de volume d'environ 1%.

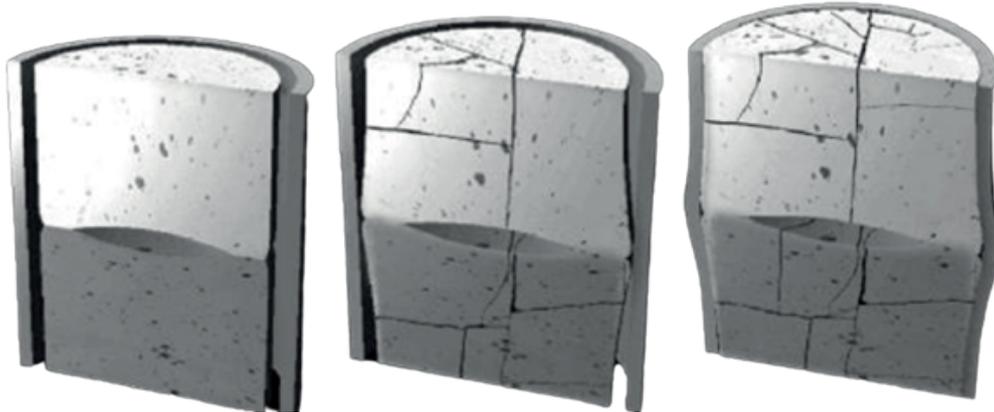


FIGURE 1.2-11 SCHEMATISATION DE LA FRACTURATION DES PASTILLES, DE LA MISE EN DIABOLO ET DE L'ÉVOLUTION DU JEU ENTRE LES PASTILLES ET LA GAINE AU COURS DE L'IRRADIATION [54].

A contrario, la fission (créant deux atomes à partir d'un noyau lourd) entraîne un gonflement du combustible, continuant tout au long de l'irradiation. Ce gonflement est tributaire des conditions d'irradiation, notamment de la température. Les produits de fission, tels que le xénon et le krypton, peuvent former des bulles contribuant au gonflement global des pastilles sous certaines conditions.

La compétition entre densification et gonflement conduit, à faible taux de combustion, à une contraction du matériau. Après environ $15 \text{ GW}_j/t_U$, seul le gonflement est perceptible, la densité initiale étant rétablie entre 15 et $30 \text{ GW}_j/t_U$ [61]. Ce gonflement, associé à la mobilité des fragments formés par la fissuration et à la réduction du diamètre de la gaine par fluage sous irradiation, entraîne une fermeture de l'espace entre combustible et gaine. Un contact de plus en plus important s'établit, devenant presque complet autour de $30 \text{ GW}_j/t_U$.

Parallèlement, une couche de zircone d'environ $8 \mu\text{m}$ d'épaisseur se forme à l'interface de la gaine, par diffusion de l'oxygène du combustible dans l'alliage de la gaine. La forme en "diabolo" du combustible, le rapprochement du jeu et la formation de la couche de zircone interne entraînent un accrochage entre la gaine et le combustible qui perdure, même lors des arrêts du réacteur.

1.2.6 Le relâchement des gaz de fission en réacteur en fonctionnement normal

L'irradiation engendre la création d'atomes de gaz suite aux fissions, qui s'implantent dans l'oxyde. Le xénon et le krypton présentent une faible solubilité dans la matrice UO_2 et sont donc préférentiellement intégrés dans les défauts lacunaires, se trouvant alors piégés dans une configuration plus stable [62] [63]. L'accumulation et la diffusion de ces gaz conduisent à la formation de bulles nanométriques dans les grains et au piégeage du gaz aux joints de grains ou dans les dislocations comme illustré Figure 1.2-12.

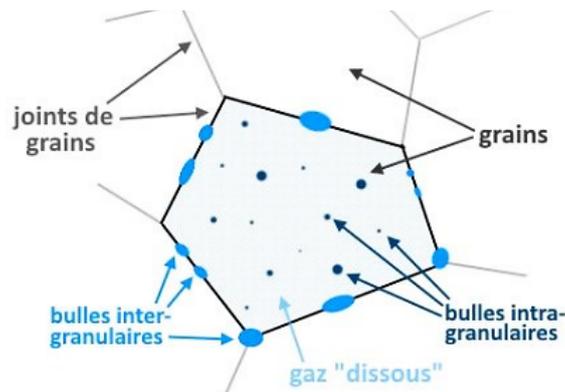


FIGURE 1.2-12 SCHEMA DES FORMES ET DE LA LOCALISATION PRISES PAR LE GAZ DANS L' UO_2

La diffusion de ce gaz (atomes isolés ou bulles) est activée par des températures locales élevées ou une densité de fission suffisante. Elle se caractérise par un coefficient de diffusion [64] qui présente trois régimes de diffusion en fonction de la température (Figure 1.2-13):

- La diffusion athermique, dominante à des températures inférieures à $1000^{\circ}C$, résulte du déplacement des atomes de gaz par les pointes de fission. [65]
- La diffusion thermique, survenant à des températures supérieures à $1400^{\circ}C$. [66]
- La diffusion mixte, relevant des températures intermédiaires, est affectée par la température et la densité de fission. Des surconcentrations de lacunes, principales contributrices à la diffusion, sont majoritairement générées par les défauts d'irradiation et leur migration est activée par la température. [67] [68]

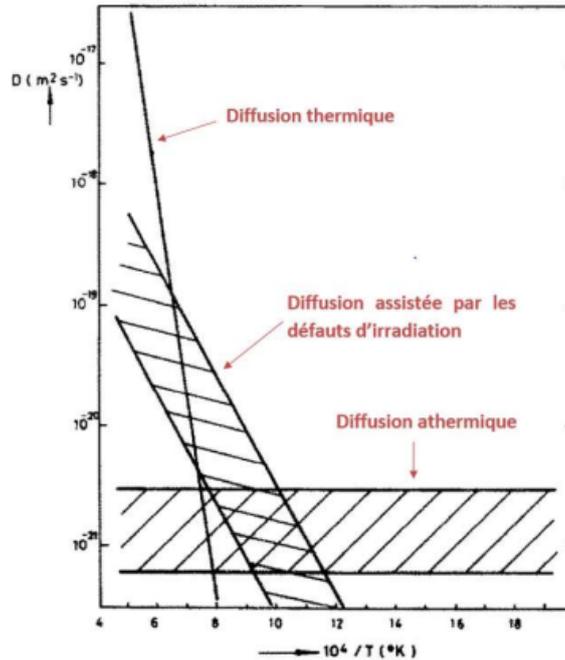


FIGURE 1.2-13 DIAGRAMME D'ARRHENIUS DE LA DIFFUSION DES GAZ RARE DANS L'UO₂ [66]

Sous l'effet de l'irradiation et de fortes températures, les bulles de gaz intragranulaire migrent vers les joints de grains et s'interconnectent, soit par effet de transport : deux bulles vont migrer vers le même point ; ou par effet coalescence : deux bulles proches l'une de l'autre vont gonfler jusqu'à fusionner. Le grossissement et l'interconnexion des bulles de gaz intergranulaires forment des tunnels de gaz le long des joints triples (Figure 1.2-14). Lorsqu'un tunnel de gaz atteint une fissure ou une surface libre, le gaz est libéré hors de la céramique. [69]

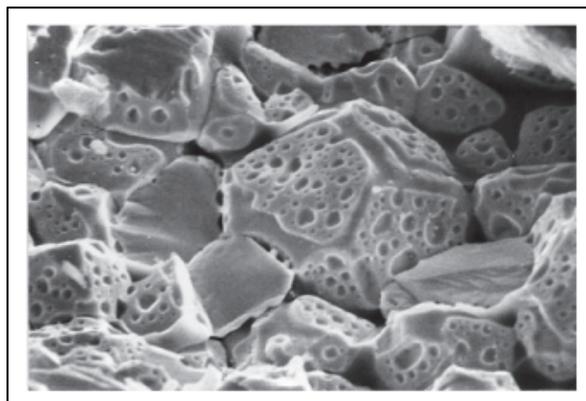


FIGURE 1.2-14 IMAGE MET DE L'INTERCONNEXION DES BULLES DE GAZ AUX JOINTS DE GRAINS [54]

Une proportion des gaz de fission générés peut donc être libérée du combustible, rejoindre les volumes libres du crayon (plénum du crayon, les fissures, ainsi que les espaces constitués par les évidements et les chanfreins aux extrémités des pastilles) augmentant la pression dans le crayon combustible. Conjugué à la diminution du volume disponible dans le crayon (fluage de la gaine et gonflement des pastilles), le relâchement des gaz constitue un phénomène potentiellement limitant pour la durée

de l'exploitation et donc la performance du combustible. Un relâchement minimal de gaz de fission survient dès le début de l'irradiation. Ce relâchement initial est principalement causé par la diffusion athermique près des surfaces ouvrant vers les volumes libres. Néanmoins, sous des conditions nominales d'irradiation, ce phénomène s'intensifie à des taux de combustion élevés, au-delà d'une valeur seuil d'environ 40 GW_j/t_U (Figure 1.2-15).

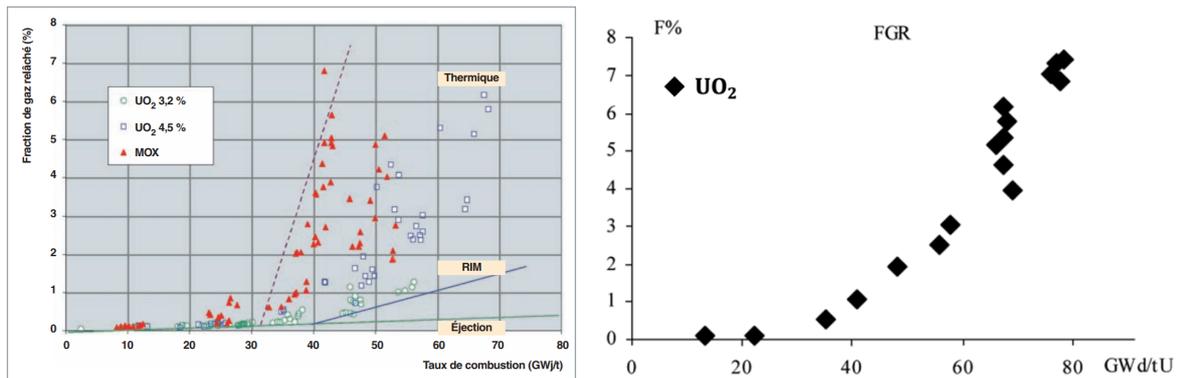


FIGURE 1.2-15 ÉVOLUTION EN FONCTION DU TAUX DE COMBUSTION DE LA FRACTION DE GAZ DE FISSION RELACHES DANS DES CRAYONS REP UO₂ ET MOX . [61] [54]

Cette valeur seuil et l'intensité du relâchement dépendent également des puissances linéiques atteintes pendant l'irradiation de base. Des travaux démontrent que ce relâchement en condition normale provient principalement de la zone centrale des pastilles [70]. La diffusion seule des atomes de gaz de fission n'explique pas entièrement l'augmentation du relâchement à des taux de combustion élevés [68]. Les combustibles à taux de combustion élevé irradiés en régime nominal ne présentent pas de réseaux d'interconnexion tels qu'illustrés en Figure 1.2-14. En effet, des observations récentes de tomographies 3D des bulles au centre d'un échantillon à taux de combustion élevé montrent que les bulles ne forment pas de réseau, malgré un fort relâchement des gaz de 6,2% [71]. Ces résultats suggèrent donc un comportement et des mécanismes différents pour les combustibles à fort taux de combustion en conditions d'irradiation nominales. Les particularités du combustible à haut taux de combustion seront approfondies dans la section suivante, consacrée à sa description, sa microstructure et la distribution du gaz de fission dans ses différentes zones.

1.3 LE COMBUSTIBLE A FORT TAUX DE COMBUSTION

Comme nous venons de l'aborder, l'accroissement du taux de combustion dans les combustibles oxydes génère une importante quantité de gaz de fission. Ceci produit pour les combustibles dits à hauts taux de combustion (typiquement supérieur à 50 GW_j/t_U) un changement de microstructure qui apparaît notamment en périphérie des pastilles [72] [73] [74]. En transitoire thermique, le gaz accumulé dans le combustible à fort taux de combustion est susceptible de relâcher. Pour mieux comprendre ces phénomènes, nous consacrerons cette partie à détailler succinctement les particularités microstructurales et le relâchement des gaz de fission du combustible à fort taux de combustion.

1.3.1 Évolution de la microstructure à haut taux de combustion

Dans les combustibles REP irradié à haut taux de combustion, nous pouvons distinguer trois zones majeures, chacune caractérisée par une microstructure distincte [72] [73]. En se référant à la Figure 1.3-1 pour un combustible UO_2 irradié pendant 5 cycles en REP [75], ces zones sont les suivantes:

- La zone centrale ($0R < r/R < 0,50R$), se caractérise par des grains d'environ 10 μm de diamètre et des précipitations de bulles de gaz principalement intragranulaires [72].
- La zone intermédiaire ($0,50R < r/R < 0,9$), présentant des grains d'environ 10 μm de diamètre, une porosité très faible. [72]
- La zone HBS ($0,9R < r/R < 1R$), pour "High Burn-up Structure", dont l'épaisseur augmente avec le taux de combustion. Cette zone se caractérise par la subdivision des grains initiaux de la céramique en grains de taille submicrométrique et la formation d'une porosité significative. On y trouve de nombreuses bulles intergranulaires de taille proche du micromètre [75].

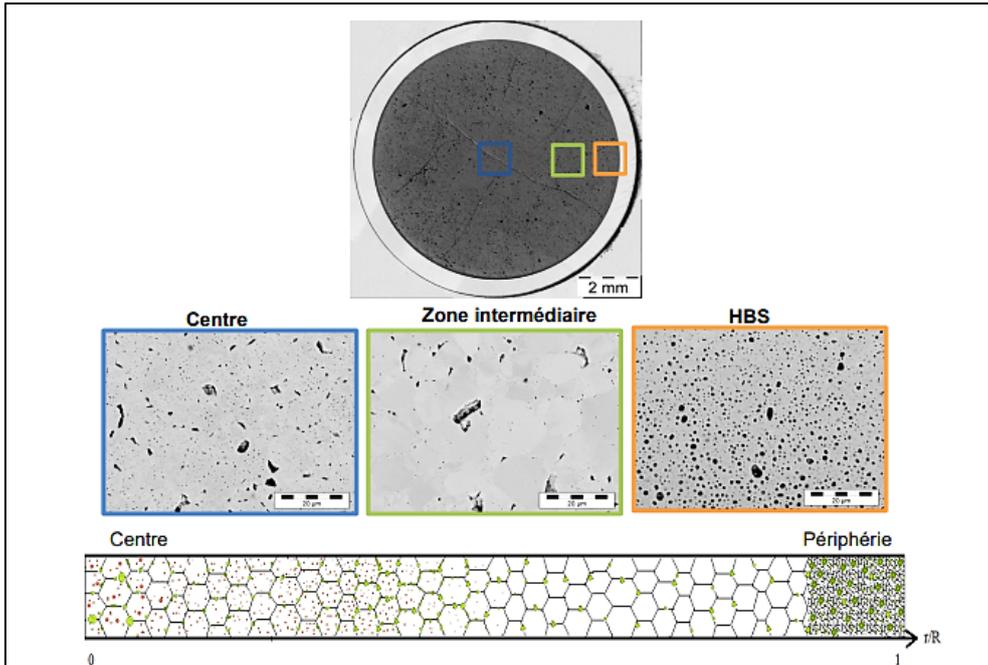


FIGURE 1.3-1 IMAGES MEB DE LA PERIPHERIE, DE LA ZONE INTERMEDIAIRE ET DE LA ZONE CENTRALE D'UN COMBUSTIBLE UO_2 IRRADIE 5 CYCLES EN REP [76]

L'épaisseur de l'HBS varie de 50 μm pour les combustibles UO_2 de 50 GW_j/t_U à 250 μm pour ceux à haut taux de combustion (80 GW_j/t_U) [73] [77] comme illustré dans la Figure 1.3-2.

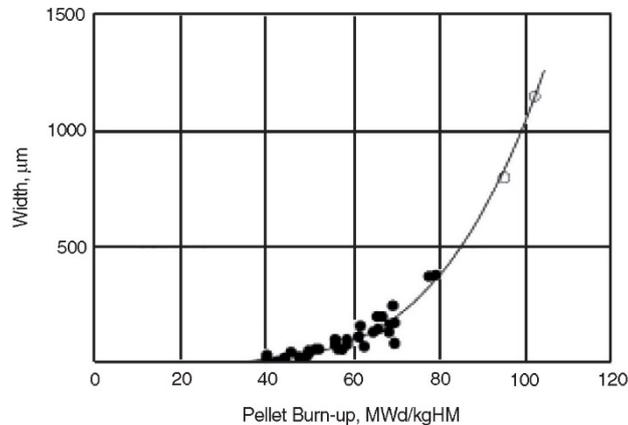


FIGURE 1.3-2 EPAISSEUR RADIALE DU RIM EN FONCTION DU TAUX DE COMBUSTION, MESUREE PAR MICROSCOPIE OPTIQUE SUR DES COUPES TRANSVERSALES DE COMBUSTIBLE REP [77].

Le profil radial du plutonium (Pu) pour des combustibles REP irradiés à 5, 6 et 7 cycles est présenté à la Figure 1.3-3 [78]. L'augmentation de la teneur en Pu en périphérie extrême de la pastille est principalement due à la capture des neutrons épithermiques par l' ^{238}U [79] [80]. Cette teneur en Pu est d'environ 3 à 4 % en périphérie, alors qu'au centre elle est d'environ 1 % après 5 cycles d'irradiation.

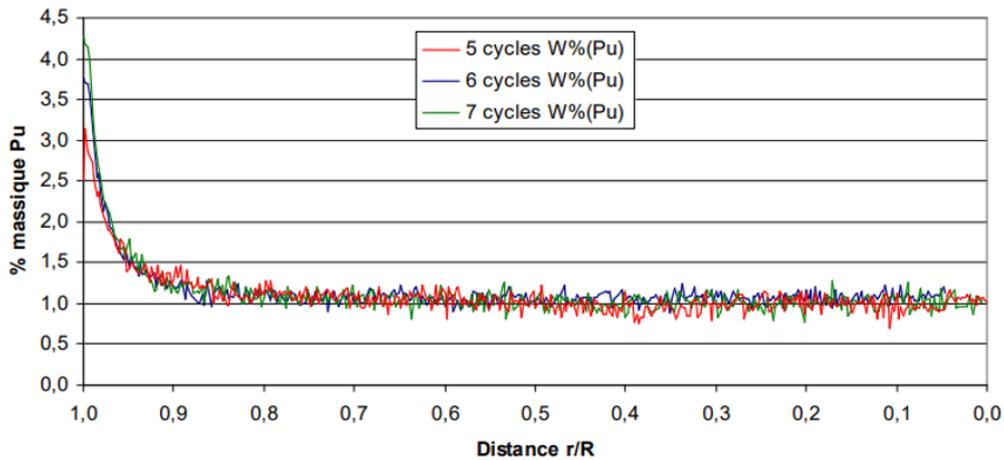


FIGURE 1.3-3 PROFIL RADIAL PU DANS DES PASTILLES REP IRRADIE A 5, 6 ET 7 CYCLES

L'augmentation locale du taux de combustion due à la concentration du Pu en périphérie est visible à l'aide de mesures de concentration en néodyme effectuées à la microsonde [80]. Pour une pastille irradiée pendant 7 cycles en REP, avec un taux de combustion moyen de $82,7 \text{ GW}_j/t_U$, la concentration plus élevée de néodyme en périphérie (Figure 1.3-4) permet de déterminer un taux de combustion local plus important pour la zone RIM. Cette valeur est évaluée à $120 \text{ GW}_j/t_U$ pour la pastille considérée.

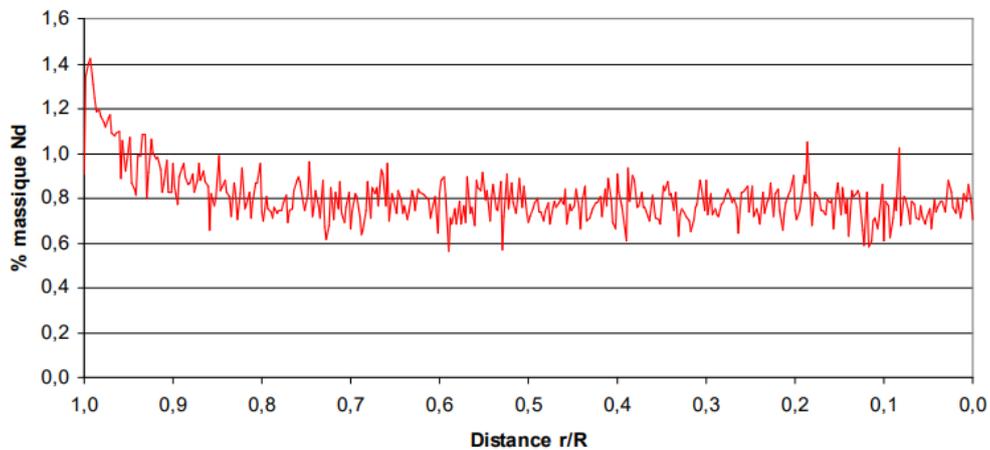


FIGURE 1.3-4 PROFIL RADIAL DU NEODYME DANS UNE PASTILLE REP IRRADIE 7 CYCLES A $82,7 \text{ GW}_j/t_U$

La distribution radiale du xénon mesurée au SIMS sur un combustible REP irradié 5 cycles à $57,4 \text{ GW}_j/t_U$ est présentée à la Figure 1.3-5. L'augmentation du signal en périphérie est corrélée à la forte porosité de la zone de RIM (10 à 30%) [81] illustré en Figure 1.3-6 qui accueille une forte densité de bulles micrométriques.

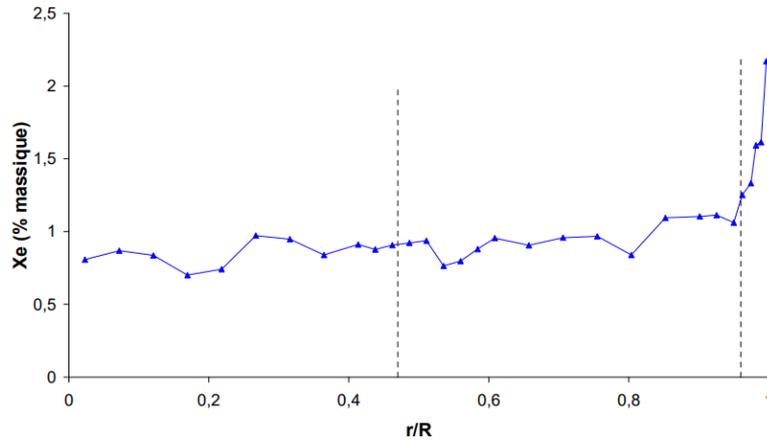


FIGURE 1.3-5 REPARTITION RADIALE DU XENON DANS UNE PASTILLE REP IRRADIEE 5 CYCLES

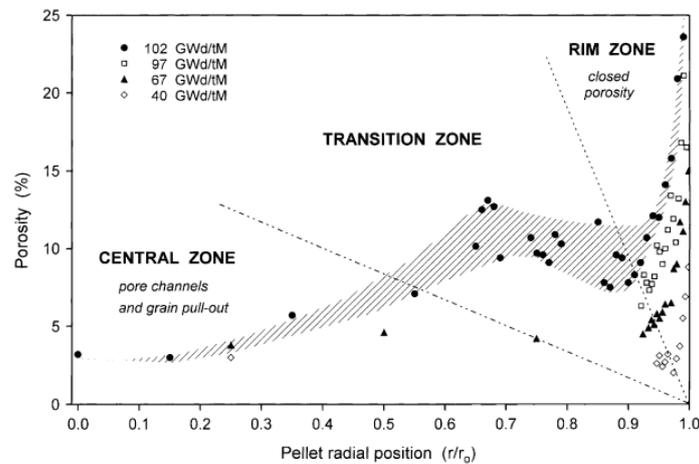


FIGURE 1.3-6 VARIATION DE LA POROSITE DU COMBUSTIBLE EN FONCTION DU RAYON DE LA PASTILLE ET DU TAUX DE COMBUSTION [81].

Des observations réalisées sur des combustibles fortement irradiés, notamment par microsonde [72], mettent en évidence une distribution radialement inhomogène du gaz au sein d'une pastille (Figure 1.3-7) ce qui est cohérent avec les observations de bulles effectuées au MEB (Figure 1.3-1). La microsonde met uniquement en évidence la présence du gaz dissous dans la matrice. Ainsi, la diminution de la proportion de gaz dissous en position centrale et périphérique confirme la présence de bulles à ces positions.

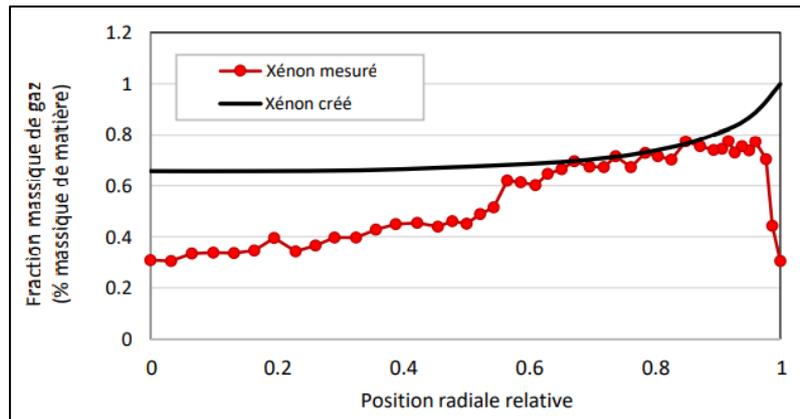


FIGURE 1.3-7 SECTION RADIALE D'UN ECHANTILON UO_2 (55,9 GW_j/t_U) : MESURE PAR MICROSONDE DE LA DISTRUBUTION RADIALE DU XENON [72]

Le pourcentage de gaz dissous dans la matrice est faible à faible taux de combustion et atteint rapidement une valeur stationnaire d'environ 30% de l'inventaire total, à des taux de combustion élevés. En revanche, la fraction de gaz dans les bulles est élevée à faible taux de combustion et atteint une valeur d'équilibre d'environ 50% pour la porosité intergranulaire et 20% pour la porosité intragranulaire à des taux de combustion élevés [81].

En conclusion, l'inventaire du gaz de fission d'un échantillon de combustible à l'issue de son irradiation peut être défini comme la somme de plusieurs sous-inventaires : le gaz dissous/les bulles nanométriques, les bulles submicrométriques en zone centrale, les bulles micrométriques en inter-granulaire, et le gaz relâché pendant l'irradiation. Ces inventaires ont été modélisés et représentés pour un échantillon UO_2 irradié à 61,4 GW_j/t_U dans la Figure 1.3-8 [82].

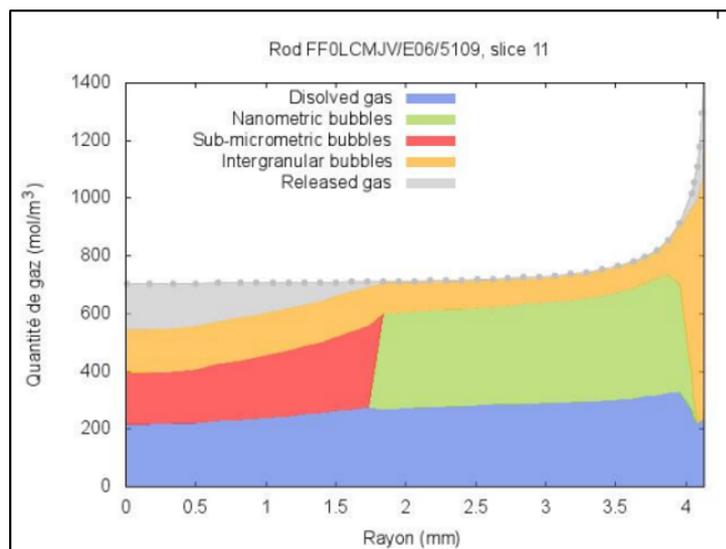


FIGURE 1.3-8 MODELISATION DES INVENTAIRES DE GAZ DE FISSION DANS L'ECHANTILLON UO_2 IRRADIE (DONNEES ISSUES DU MODELE CARACAS [82])

1.3.2 La pression des bulles de gaz dans le combustible à fort taux de combustion

Il est possible d'effectuer des mesures spécifiques aux bulles de gaz de fission en complétant les techniques de quantification par Microsonde (Figure 1.3-7) avec l'utilisation conjointe d'observations MEB et SIMS. Cette méthode permet de révéler simultanément la quantité de gaz contenue dans les bulles et leur volume. Ces données permettent ensuite de calculer une valeur moyenne du volume molaire et, via une équation d'état appropriée, la pression dans ces bulles. Les techniques d'analyse utilisées pour déterminer ces valeurs varient selon la littérature. Dans sa thèse, Doweck a effectué une synthèse bibliographique en recalculant la pression des bulles de gaz micrométriques déterminées dans de nombreux travaux [113] [114] [115] [116] [61] [76], afin de permettre leur comparaison [83]. Cette synthèse est représentée dans le tableau I-3.1.

La synthèse de ces diverses approches a confirmé que les bulles micrométriques sont fortement pressurisées dans les pastilles d' UO_2 irradiées à fort taux de combustion. Cependant, les données se concentrent principalement sur les bulles du RIM, avec des pressions à température ambiante de 7 à 20 MPa. Les données concernant le centre de la pastille sont limitées, avec une dispersion de 6 MPa à 68 MPa dont la distribution en taille des bulles est également connue pour être large.

Références	Noirot <i>et al.</i> [113]			Walker <i>et al.</i> [114]	Horvath <i>et al.</i> [115]	Noirot <i>et al.</i> [116]	Noirot <i>et al.</i> [61]		Cagna [76]
Taux de combustion pastille (GWj/t _u)	68	62	78	65	~100 (réf. [74])	103	83		73
Taux de combustion local (GWj/t _u)	105	120	120	100	300 (réf. [74])	~103	~80	>100	~70
Position dans la pastille	rim (1R)			rim (1R)	rim (1R)	Disque combustible	centre (OR-0,24R)	rim 1R	centre OR
Techniques couplée	Microsonde /MEB			Microsonde /MEB	LA-ICP-MS	Microsonde /SIMS/MEB	Microsonde /SIMS/MEB		Microsonde /SIMS/MEB
Pression recalculée (MPa) Soave EOS, 293 K	8,6	7,7	8,6	19,6	~7,5	9,0	6,4 – 7,3	7,8	68,1

TABLEAU 1.3-1 DONNEES BIBLIOGRAPHIQUES RELATIVES AUX BULLES MICROMETRIQUES DANS DES ECHANTILLONS D'UO₂ IRRADIES EN REP [83]

D'autres travaux nous permettent d'estimer la pression des volumes de gaz, avant leurs relâchements lors d'un traitement thermique [84]. Les résultats d'une campagne de traitement thermique sur des échantillons de combustibles irradiés dans le réacteur

Halden sont synthétisés dans la Figure 1.3-8. Les échantillons ayant un taux de combustion de $71 \text{ GW}_j/t_U$ ont été soumis à une rampe de température très rapide de 6 à $935 \text{ }^\circ\text{C/s}$ sous des conditions de pression hydrostatique allant de 0 à 150 MPa. Il est important de noter que la libération devient significative entre 30 et 60 MPa. Cela indique que les gaz libérés pendant l'expérience sont à une pression inférieure ou égale à 60 MPa au moment où le gaz se met à relâcher.

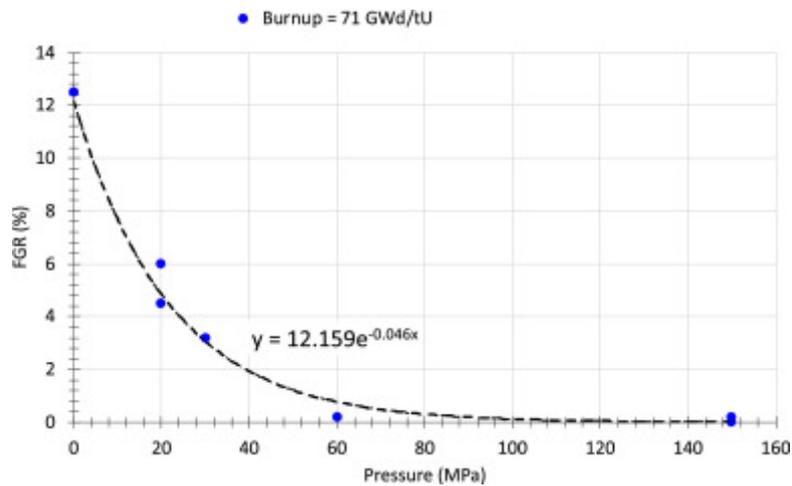


FIGURE 1.3-9 TAUX DE RELACHEMENT DE GAZ DE FISSION D'UN ECHANTILLON REP DE 71 GW_j/t_U EN TT EN FONCTION D'UNE CONTRAINTE HYDROSTATIQUE [55]

1.4 MOYENS EXPERIMENTAUX ET TRAITEMENT DES DONNEES EXPERIMENTALES

Dans l'objectif d'étudier les relâchements gazeux du combustible nucléaire irradié lors d'un transitoire thermique, le LAMIR (Laboratoire d'Analyse de la Migration des Radioéléments) dispose d'une boucle expérimentale dédiée, baptisée MERARG. MERARG est l'acronyme de « Moyen d'Étude par Recuit et Analyse des Relâchements Gazeux ». Cette installation expérimentale permet de réaliser des traitements thermiques (TT) sur des échantillons de combustibles irradiés. Elle est située dans le laboratoire de haute activité LECA-STAR (Laboratoire d'examen des combustibles actifs et la Station de traitement, d'assainissement et de reconditionnement) sur le centre du CEA Cadarache. Ces laboratoires sont conçus dans l'objectif de manipuler des matériaux irradiés et radioactifs dans des cellules blindées, afin d'assurer un haut niveau de sûreté.

Cette section s'attachera à présenter ces moyens expérimentaux, ainsi que les méthodes mises en œuvre pour analyser les résultats de ces examens.

1.4.1 Préparation d'un traitement thermique

Les échantillons REP utilisés dans MERARG sont majoritairement issus de crayons combustibles irradiés dans les réacteurs nucléaires à eau pressurisée du parc électrogène Français opéré par EDF. Ces crayons sont prélevés de leur assemblage et envoyés dans les laboratoires chauds du LECA-STAR sur le centre de Cadarache (Figure 1.4-1).

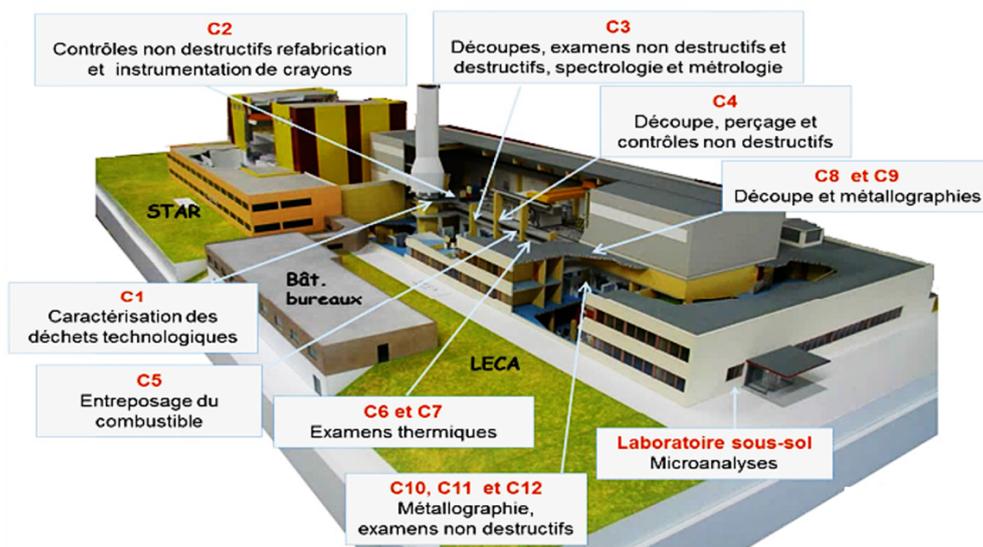


FIGURE 1.4-1 COUPE SCHEMATIQUE DU LABORATOIRE CHAUD « LECA-STAR »

STAR (Station de Traitement, d'Assainissement et de Reconditionnement) est une installation composée de trois cellules « béton » capables de recevoir des crayons d'une longueur allant jusqu'à 4,4 mètres. Les crayons combustibles irradiés sont tout d'abord réceptionnés au sein de châteaux de transport dans la cellule 3, pour être ensuite entreposés dans un carquois. L'intérieur du crayon étant sous pression, il est ensuite acheminé dans la cellule 2, où il subit un perçage au niveau du plénum et des examens de caractérisation. Il peut alors être découpé dans cette même cellule en tronçon de moins de 2,5 mètres pour être réacheminé par châteaux de transport au LECA.

Le LECA (Laboratoire d'Examens des Combustibles Actifs) est un laboratoire qui comprend 12 cellules blindées permettant d'accueillir, de conditionner et de caractériser des crayons combustibles d'une longueur allant jusqu'à 2,5 mètres. Après un temps d'entreposage variable dans un puits de stockage dédié, les tronçons de crayon prédécoupés dans STAR sont découpés dans la cellule 8 en échantillons typiquement de la taille d'une pastille. Cette nouvelle découpe suit un plan de coupe déterminé à partir d'une gammamétrie du crayon en fonction de sa cotation axiale, illustré en Figure 1.4-2. On distingue plusieurs informations sur ce graphique, à commencer par l'extrémité du crayon à gauche, où le taux de combustion est plus faible. On distingue également la position de l'intergrille de l'assemblage du crayon. L'intergrille est un élément mécanique permettant de maintenir les différents crayons au sein d'un assemblage. Sa présence provoque une diminution locale du taux de combustion, tel qu'on peut l'observer aux alentours de la cote 700 de la Figure 1.4-2. Enfin, on peut distinguer individuellement chaque pastille du crayon, séparée par les oscillations régulières du taux de combustion, marquant ainsi l'espace qui les sépare. Quelques exemples sont représentés sur la figure par un trait de couleur.

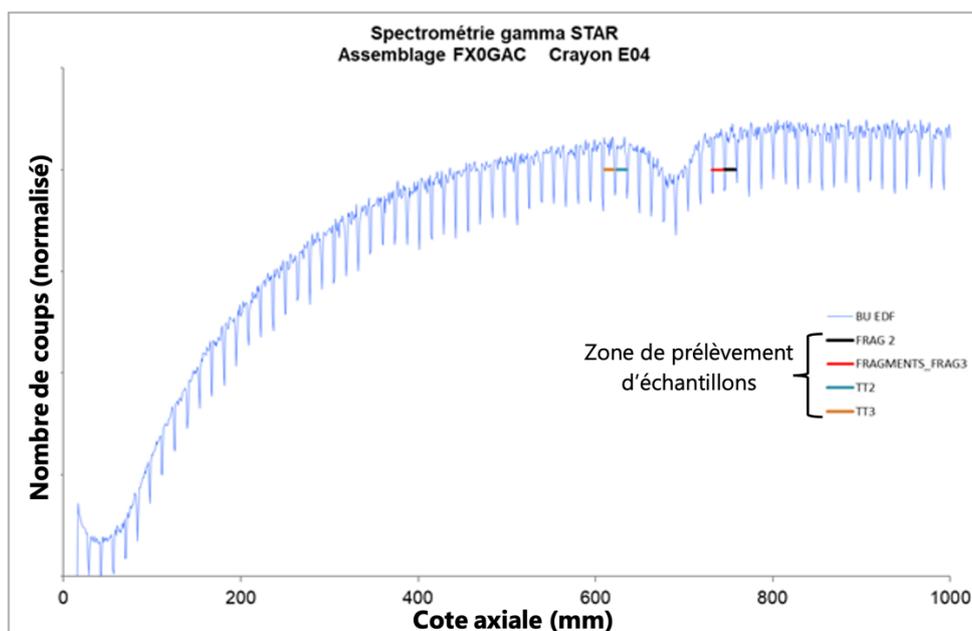


FIGURE 1.4-2 SPECTROMETRIE GAMMA D'UNE SECTION DE CRAYON COMBUSTIBLE IRRADIE

Les échantillons sont sélectionnés et découpés de manière à obtenir une pastille accompagnée de sa gaine. Le taux de combustion de l'échantillon dépend de sa zone de prélèvement, et il correspond à une valeur moyenne de cet échantillon.

Il est important de noter que pendant la phase de perçage dans STAR et de découpe au LECA, une partie du gaz contenu dans des porosités ouvertes s'échappe. Lors du perçage, les quantités relâchées peuvent être significatives en fonction du taux de combustion et sont mesurées. Lors de la découpe, elles sont plus faibles et donc non mesurées.

Une fois l'échantillon combustible récupéré, il est pesé puis placé dans le creuset du four MERARG pour subir un traitement thermique (TT) en cellule C7 du LECA.

Finalement entre la sortie du réacteur où il a été irradié et le début de son traitement thermique, le combustible peut être stocké sur des périodes de plusieurs années. Comme nous l'avons évoqué précédemment, la demi-vie du ^{85}Kr , que nous mesurons dans MERARG, est de 10,74 ans. Une partie des gaz contenus dans le combustible subit une désintégration pendant la période d'entreposage. Afin de pallier cette décroissance des gaz, les données de relâchement sont recalculées lors des TT en remontant à l'inventaire initial du gaz au moment de la sortie de réacteur de l'échantillon.

1.4.2 Présentation de MERARG

MERARG est l'une des installations expérimentales du LAMIR pour l'étude et l'analyse des relâchements gazeux. MERARG permet de caractériser des combustibles nucléaires irradiés vis-à-vis du relâchement des gaz de fission et optionnellement des produits de fissions volatiles, lors de transitoires thermiques. Les niveaux de température atteints permettent d'extraire une partie ou la totalité de l'inventaire contenu au sein de l'échantillon étudié. L'ensemble expérimental, représenté en Figure 1.4-3, se compose de quatre parties principales :

- Un four à induction haute-fréquence, situé en cellule de haute activité ;
- Un détecteur de spectrométrie gamma en ligne, situé en zone arrière, et complété par une visée gamma échantillon ;
- Un couple de pompes Gen'Air - Jok'Air, permettant de mesurer et d'imposer si besoin la pression partielle en oxygène dans la boucle ;
- Un système d'imagerie de l'évolution de la morphologie pendant un traitement thermique baptisé « Visu Fragmentation »
- Une boîte à gants incluant le micro-chromatographe en phase gazeuse et les dispositifs de récupération des gaz actifs, située elle aussi en zone arrière.

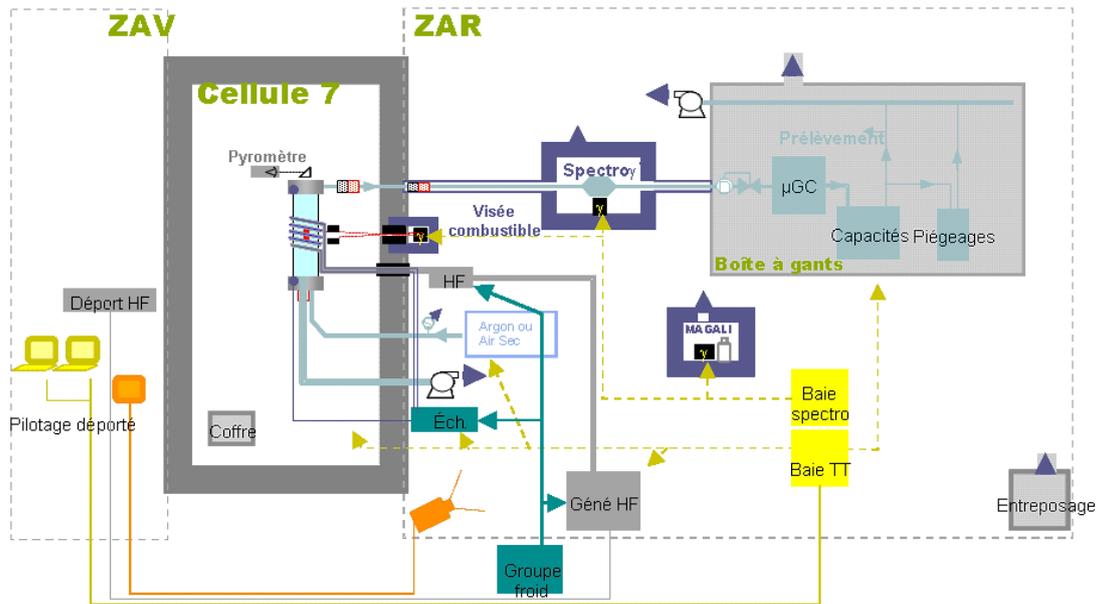


FIGURE 1.4-3 SCHEMA DU CIRCUIT EXPERIMENTAL MERARG

Nous détaillerons le fonctionnement des principaux éléments sur lesquels s'appuieront nos travaux.

Le four

Le combustible à caractériser, généralement une pastille combustible avec sa gaine, est placé dans un creuset métallique pouvant être en tungstène, molybdène ou platine, positionné au centre de la spire à induction du four, illustré en Figure 1.4-4. Celle-ci est alimentée par un générateur de puissance haute fréquence. Le creuset métallique fait également office de suscepteur vis-à-vis du chauffage HF. L'enceinte du four, constituée d'un tube quartz à l'intérieur duquel est placé le creuset, est étanche vis-à-vis du reste de la cellule. L'intérieur de cette enceinte est balayé par circulation d'un gaz neutre (gaz dit « vecteur », généralement de l'Argon ou de l'Helium). On qualifie ce gaz de neutre, car il n'entre pas en interaction chimique avec les espèces gazeuses étudiées. L'objectif de ce balayage est d'acheminer les relâchements gazeux depuis l'échantillon jusqu'à une chambre de comptage (en zone arrière) où se situe le spectromètre gamma, via un réseau de canalisation de plusieurs mètres. En termes de performance, le four peut atteindre des températures jusqu'à 2600°C et une rampe de 50°C/s maximum.

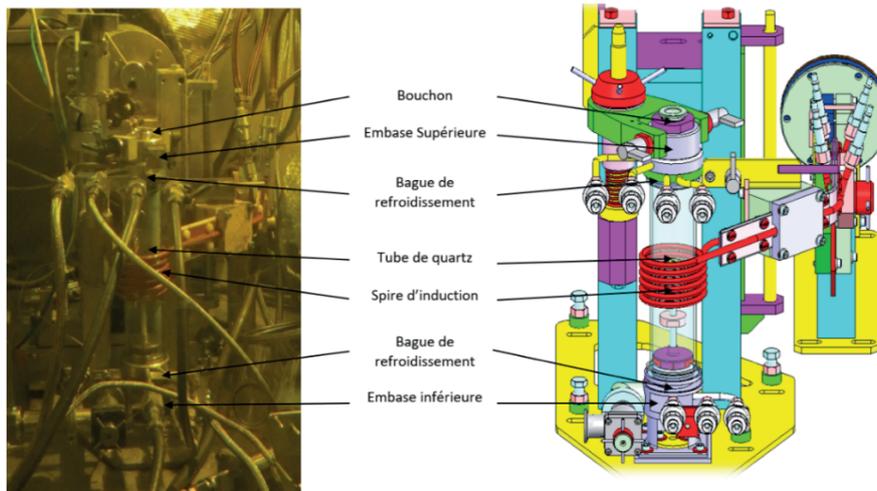


FIGURE 1.4-4 SCHEMA DU FOUR DANS MERARG

Le détecteur de spectrométrie gamma

Le spectromètre gamma utilisé dans MERARG est un détecteur à semi-conducteur au germanium [85]. Il s'agit d'un appareil permettant de mesurer l'énergie des rayonnements gamma émis par les particules qui passent dans la chambre de comptage, représenté à droite dans la Figure 1.4-5. L'énergie à laquelle le rayonnement gamma est émis permet d'identifier l'espèce relâchée et la quantification est obtenue par étalonnage du dispositif complet dans les conditions de mesure [85]. Lors de la montée en température, les différents gaz qui s'échappent du combustible sont entraînés par le gaz de balayage et passent en zone arrière vers le poste de spectrométrie gamma en ligne mesurant leur activité. Le comptage par spectrométrie gamma a pour objectif de permettre l'étude de la cinétique de relâchement au niveau de l'échantillon en fonction de la température et de la durée des traitements, et de donner accès aux fractions relâchées globales. Considéré comme l'un des principaux produits de fission à vie moyenne, nous nous intéresserons principalement à la mesure du relâchement du ^{85}Kr . Il s'agit en effet d'un des seuls isotopes instables du krypton à la fois présent en abondance dans les produits de fission et disposant d'une demi-vie suffisante pour travailler sur des échantillons combustibles irradiés au cours des 20 dernières années. Il possède un rendement de fission de 0,3% et d'une demi-vie de 10,76 ans. Pour évaluer les fractions de ^{85}Kr relâchées lors d'un traitement thermique, la mesure du relâchement du ^{85}Kr est normalisée en fonction de l'inventaire initialement présent dans l'échantillon à une date de référence donnée, généralement au moment de sa sortie de réacteur. C'est-à-dire qu'au dépouillement des résultats de chaque traitement thermique nous recalculons la quantité de gaz initiale présente dans l'échantillon à la fin de son irradiation (avant décroissance) et évaluons la quantité de gaz relâché en fonction de cette quantité initiale. Ainsi, nous pouvons comparer les quantités de gaz relâchés de différents traitements thermiques indépendamment de la décroissance radioactive que subissent les échantillons en fonction de leur temps d'entreposage respectif.

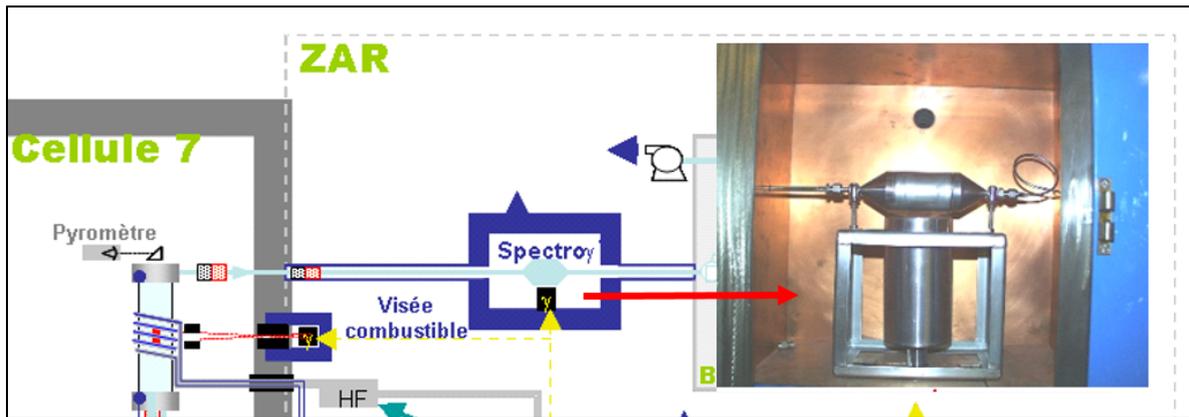


FIGURE 1.4-5 SCHEMA DU DETECTEUR DE SPECTROMETRIE GAMMA DANS MERARG

Le Gen'Air et Jok'Air

S'appuyant sur les propriétés ioniques de la zircone, le Gen'Air permet d'imposer et de mesurer des atmosphères d'oxygène variées (Figure 1.4-6). Le Gen'Air est constitué d'une pompe à oxygène, qui appauvrit ou enrichit en oxygène le gaz qui passe à l'intérieur de son tube en zircone. Il dispose également d'une jauge placée après la pompe, qui permet de valider la valeur de pression partielle en oxygène générée par la pompe. Le Gen'Air situé en amont du four est monté en série avec le Jok'Air, situé quant à lui en aval. Le Jok'Air permet donc de mesurer la pression partielle d'oxygène à la sortie du four. Ce dispositif permet à la fois de mesurer les échanges d'oxygène dans la ligne, et d'imposer si besoin une pression partielle en oxygène en amont du four. La gamme de pression partielle en oxygène mesurée s'étend entre 10^{-35} et 0,25 atm. Pour imposer un milieu réducteur dans MERARG, le mélange de gaz utilisé est généralement composé d'argon hydrogéné. Pour un milieu oxydant, on utilise de l'air ou un mélange de dioxygène et de diazote.

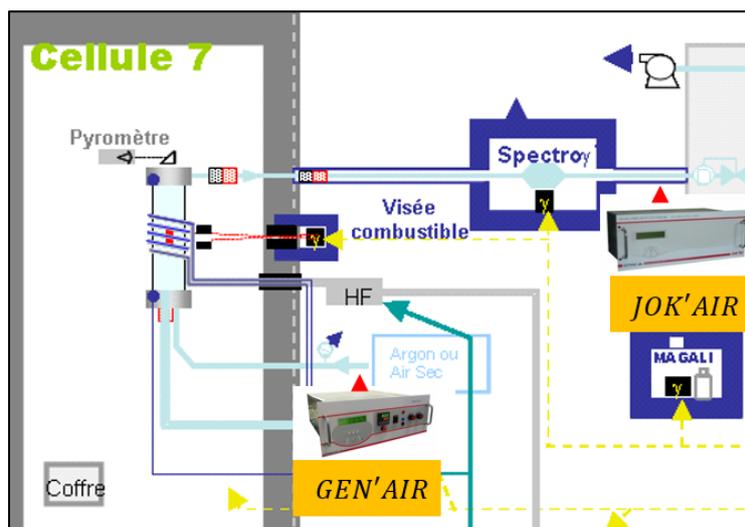


FIGURE 1.4-6 SCHEMA DU GEN' AIR EN AMONT DU FOUR ET DU JOK' AIR EN AVANT DANS MERARG

Dispositif de « Visu fragmentation »

Il est possible de suivre en ligne la fragmentation du combustible, pendant un traitement thermique, à l'aide d'un système d'imagerie de l'évolution de la morphologie du combustible irradié corrélée à une mesure de la température de surface par spectrophotométrie [86]. Très récemment implanté sur la ligne expérimentale, ce dispositif permet d'enregistrer au travers de l'orifice du couvercle du creuset, l'évolution du combustible, en termes de fragmentation ou d'autres observations et de les relier à la température ainsi qu'au relâchement de gaz de fission en cours.

Boite à gants et capacités

Après leur passage devant la diode de comptage en ligne, les gaz sont dirigés vers une boîte à gants où ils sont ensuite recueillis dans des capacités de stockage. À l'issue du traitement thermique, des prélèvements de gaz sont généralement effectués sur ces capacités pour des analyses en différé. Le recueil de l'ensemble des gaz dans ces capacités en aval de la boucle permet donc de mesurer la quantité de gaz relâchés et de confirmer celle obtenue en ligne par la spectrométrie gamma.

1.4.3 Traitement du signal de mesure des relâchements gazeux

La déconvolution analytique

Comme évoqué dans la présentation de MERARG, nous nous intéresserons essentiellement à la mesure du relâchement du ^{85}Kr , car malgré sa faible abondance après plusieurs années d'entreposage de l'échantillon, il peut être mesuré par spectrométrie gamma avec une précision plus grande que les autres isotopes, ou que le Kr et Xe élémentaire. Comme présenté dans la figure 1.4-7, la mesure du ^{85}Kr est effectuée à une distance de plusieurs mètres de l'échantillon où le relâchement a lieu, par une chambre de comptage dédiée située à l'extérieur de la cellule chaude. On trouve en dessous de cette chambre de comptage la diode du détecteur de spectrométrie gamma. La chambre a été dimensionnée pour optimiser la mesure du ^{85}Kr . Ainsi, les atomes de ^{85}Kr libérés par l'échantillon subissent une dilution avec le gaz de balayage dans le four avant d'atteindre la chambre de comptage, avec un temps de transfert de plusieurs minutes, où une nouvelle dilution a lieu. Dans l'hypothèse de réponse linéaire du système, la mesure de la cinétique du gaz dans la chambre de comptage correspond donc au produit de convolution entre la cinétique de relâchement dans le four, au niveau de l'échantillon, et une fonction de transfert. Cette fonction de transfert correspond à l'ensemble des modifications subi par le relâchement lors de son transport dans la ligne : dilution dans le four, transport dans les canalisations, dilution dans la chambre de comptage et temps de transit (il s'écoule en moyenne 12 minutes entre le relâchement d'un atome de gaz dans le four et la mesure de cet atome dans la chambre de comptage). Le relâchement du ^{85}Kr est mesuré en nombres d'atomes par gramme de combustible et par seconde. Il est en conséquence nécessaire de déconvoluer les données expérimentales acquises afin de reconstituer les données de taux de relâchement hors de la pastille combustible.

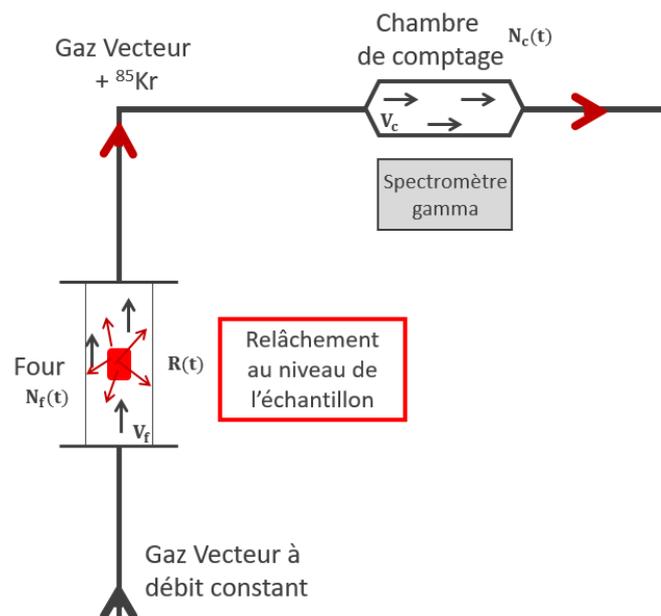


FIGURE 1.4-7 SCHEMA SIMPLIFIE DE LA CIRCULATION DES GAZ DANS MERARG, ENTRE LE FOUR A GAUCHE ET LA CHAMBRE DE COMPTAGE EN HAUT A DROITE.

Mise en équation :

Dans la figure 1.4-7, $R(t)$, $N_f(t)$ et $N_c(t)$ sont respectivement, le relâchement du 85Kr hors de l'échantillon, le nombre d'atomes dans le four et le nombre d'atomes dans la chambre de comptage au temps t . V_f et V_c sont, respectivement, le volume du four et de la chambre de comptage, tandis que d désigne le débit de gaz. On considère le débit du gaz constant dans la ligne et pendant le traitement thermique, avec une valeur fixée à $1 \text{ cm}^3/\text{s}$.

Le bilan de matière du 85Kr à la sortie du four est égal à :

$$\frac{dN_f}{dt}(t) = R(t) - \frac{d}{V_f} \cdot N_f(t) \quad (1)$$

On peut établir un bilan similaire dans la chambre de comptage :

$$\frac{dN_c}{dt}(t) = \frac{d}{V_f} \cdot N_f(t) - \frac{d}{V_c} \cdot N_c(t) \quad (2)$$

À partir des bilans de matière dans le four, en amont de la ligne, et dans la chambre de comptage, en aval, il est possible de déterminer analytiquement la cinétique du relâchement dans le four [87]. On peut ainsi isoler le relâchement, $R(t)$, ainsi :

$$R(t) = \frac{V_f}{d} \cdot \frac{d^2 N_c}{dt^2}(t) + \left(1 + \frac{V_f}{V_c}\right) \cdot \frac{dN_c}{dt}(t) + \frac{d}{V_c} \cdot N_c(t) \quad (3)$$

Cette méthode d'analyse des relâchements dans MERARG est utilisée depuis plusieurs années, permettant dans la plupart des cas d'obtenir une représentation fidèle de la cinétique de relâchement au niveau de l'échantillon dans le four comme le montre la Figure 1.4-8.

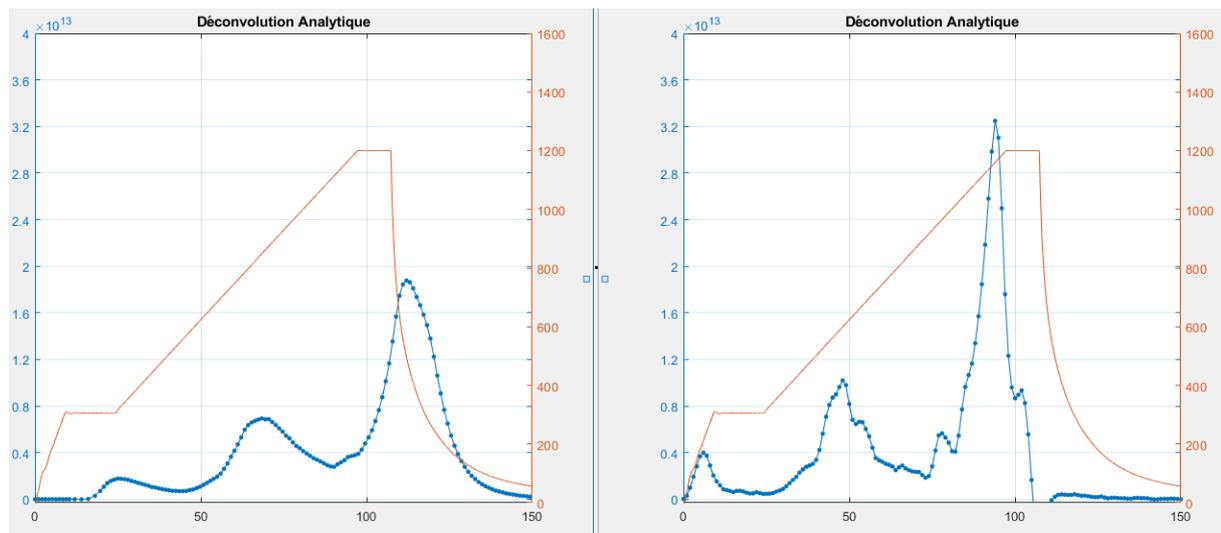


FIGURE 1.4-8 GRAPHIQUE REPRESENTANT LA MESURE DU 85KR DANS LA CHAMBRE DE COMPTAGE (A GAUCHE) ET SA DECONVOLUTION ANALYTIQUE (A DROITE).

Cependant, dans 5 à 10 % des cas des traitements thermiques, le signal est trop altéré pour obtenir un résultat exploitable comme le montre la Figure 1.4-9.

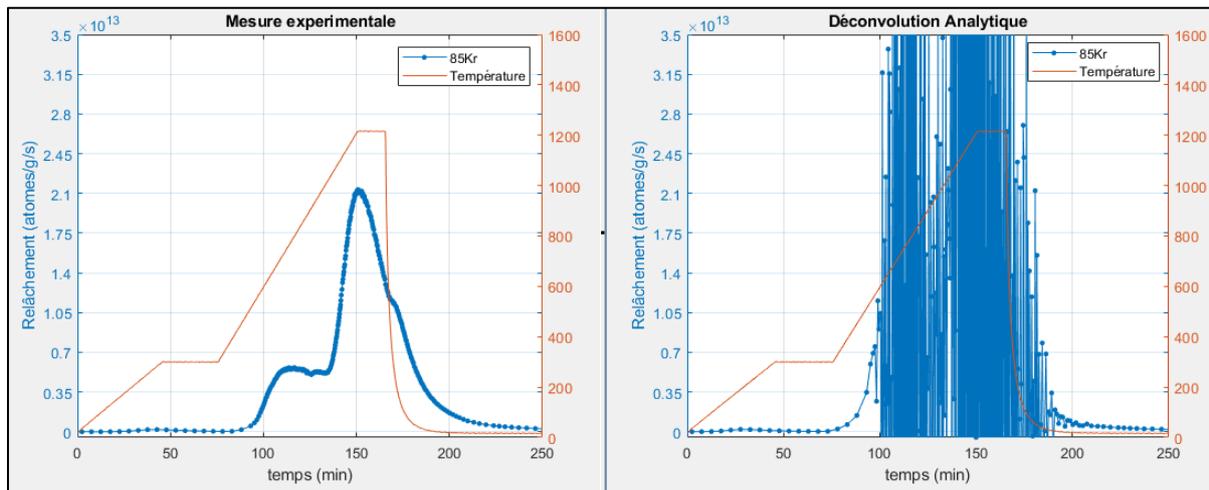


FIGURE 1.4-9 GRAPHIQUE REPRESENTANT LA MESURE DU 85KR DANS LA CHAMBRE DE COMPTAGE (A GAUCHE) ET SA DECONVOLUTION FORTEMENT ALTEREE (A DROITE).

Dans l'objectif d'analyser sur des bases similaires, l'ensemble des traitements thermiques réalisés dans MERARG, nous proposerons au chapitre 2 une amélioration du traitement numérique des données de relâchement afin de pallier ce phénomène de bruitage et d'artéfacts numériques qui affectent une partie des essais.

1.5 LE RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION EN TRANSITOIRE THERMIQUE ACCIDENTEL

L'étude du relâchement des gaz de fission pendant un essai de traitement thermique, tel que réalisé dans MERARG, nous permet de caractériser trois informations essentielles :

- **La quantité de gaz relâchés** en fonction de différents paramètres expérimentaux, tels que le taux de combustion et la charge thermique appliquée. Ces quantités sont exprimées en pourcentage par rapport à l'inventaire des gaz de fission présents dans le combustible avant essai.
- **La cinétique de relâchement** en relation avec la cinétique de la charge thermique.
- **La localisation du relâchement** à l'aide d'un gaz traceur à vie courte [87], en ne sélectionnant qu'une partie de l'échantillon lors du traitement thermique (carottage, fragment de RIM etc.) ou à l'aide d'examen post-TT complémentaire (mesures SIMS notamment).

La campagne de traitement thermique GASPARD [88] [89] [51], mentionnée précédemment, a été réalisée au début des années 2000 pour éclairer ces aspects du relâchement. Elle se compose d'une série de traitements thermiques réalisés sur des échantillons de la taille d'une pastille, avec leur gaine, irradiée entre 48,5 et 71,8 GW_j/t_U . Les rampes de température appliquées aux échantillons atteignent un palier entre 1000 et 1200°C, avec une vitesse de montée s'étalant de 0,2°C/s à 20°C/s. La Figure 1.5-1 illustre les courbes de relâchement de 85Kr obtenues lors de séquences thermiques à 0,2°C/s.

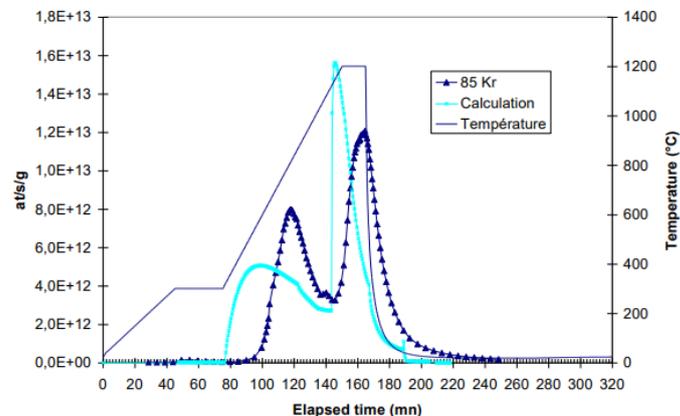


FIGURE 1.5-1 CINETIQUE DE RELACHEMENT MESUREE LORS DU PROGRAMME GASPARD [88].

L'application d'une rampe de température lente (0,2°C/s) lors de la campagne GASPARD a mis en évidence la cinétique spécifique du relâchement des gaz de fission, sous forme de bouffées successives à différents niveaux de température. Certains échantillons ont également subi une réirradiation en réacteur nucléaire de recherche (MTR). L'objectif de cette réirradiation était l'implantation d'isotopes de gaz de fission à vie courte en position intragranulaire (en particulier le ^{133}Xe qui a une demi-vie de 5,25 jours). La variation des quantités de gaz relâché entre le ^{133}Xe (demi-vie de 5,25 jours) et le ^{85}Kr (10,74 ans) permet d'évaluer la contribution des gaz intragranulaires par rapport au relâchement du gaz intergranulaire. Ainsi, la contribution au relâchement total du gaz intragranulaire a été évaluée entre 0,6 et 2,1%, soit une quantité nettement plus faible que le gaz intergranulaire (6,2 à 15,3%). Par ailleurs, des examens macrographiques post-traitement thermique ont permis d'observer de nombreuses fissures intergranulaires, notamment au centre de la pastille. D'autres observations par microscope électronique (MEB) au niveau du RIM ont révélé une forte densité de fissures reliant les bulles de gaz micrométriques de la zone HBS. Ces clichés sont illustrés aux Figure 1.5-2 et Figure 1.5-3.

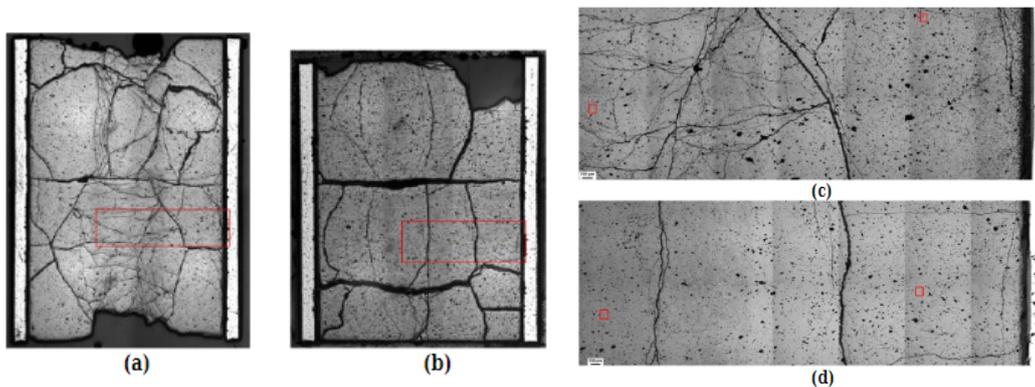


FIGURE 1.5-2 (A) ET (B) MACROGRAPHIE DE LA COUPE AXIALE D'UN COMBUSTIBLE UO_2 A 6 CYCLES APRES TT (C) ET (D) DETAIL LE LONG D'UN RAYON DE LA COUPE AXIALE D'UN COMBUSTIBLE UO_2 A 6 CYCLES APRES TT [88].

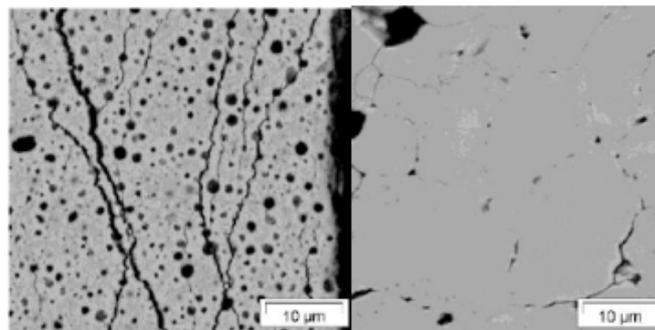


FIGURE 1.5-3 DETAILS MEB DE LA STRUCTURE HBS (RIM) ET A 0,75R DU COMBUSTIBLE UO_2 APRES TT [88].

Ces résultats sont cohérents avec une autre campagne baptisée ADAGIO, menée dans les mêmes installations. Les expériences ADAGIO (acronyme français pour Analyse Discriminante de l'Accumulation des Gaz Inter-Granulaires et Occlus) sont dédiées à la détermination de l'inventaire gazeux situé en position intergranulaire grâce à une oxydation partielle d'un combustible UO_2 irradié [90] [87]. Comme pour la campagne GASPARD, les échantillons utilisés ont été réirradiés de telle manière à constituer un réservoir de gaz traçable en intragranulaire (le ^{133}Xe). Une première phase dite d'oxydation consiste à appliquer un premier plateau à 450 °C (ou 380 °C) sous flux d'air, afin d'induire l'oxydation de l' UO_2 en $U_4O_{9\gamma}$. Comme cette étape d'oxydation se produit préférentiellement le long des joints de grains et en raison de la diminution volumique correspondante (causée par le changement de phase de l' UO_2 en $U_4O_{9\gamma}$), une décohésion des joints de grains se produit. En conséquence, le gaz intergranulaire est libéré. La contribution potentielle du gaz intragranulaire est déterminée par la libération de ^{133}Xe , et correspond à une valeur négligeable (1 à 1,5% du total). À l'inverse, la phase d'oxydation permet d'évaluer la fraction de gaz disponible en position intergranulaire, et correspond à 23,9% de l'inventaire global en ^{85}Kr pour l'échantillon combustible considéré.

Ainsi les campagnes GASPARD et ADAGIO ont permis de déterminer le rôle clef du gaz intergranulaire lors du relâchement des gaz de fission en transitoire thermique pour les combustibles à fort taux de combustion. Ce gaz intergranulaire relâche sous forme de plusieurs bouffées successives de gaz à différent niveau de température. La décohésion des joints de grains dans la zone centrale et la fracturation de la zone HBS des échantillons est mise en avant pour expliquer le relâchement. La pression des bulles de gaz intergranulaire augmente sous l'effet de la rampe de température. L'augmentation de la pression interne de ces bulles, déjà surpressurisées, engendre des contraintes sur les joints de grains. Ce phénomène induit donc une décohésion du joint de grains par fracturation, illustrer sur la Figure 1.5-4 [75]. Les travaux de modélisation [91], et tout particulièrement les codes de calcul ALCYONE en France [92] et BISON aux États-Unis [93], ont d'ailleurs intégré ce mécanisme pour décrire le relâchement des gaz de fission en transitoire thermique.

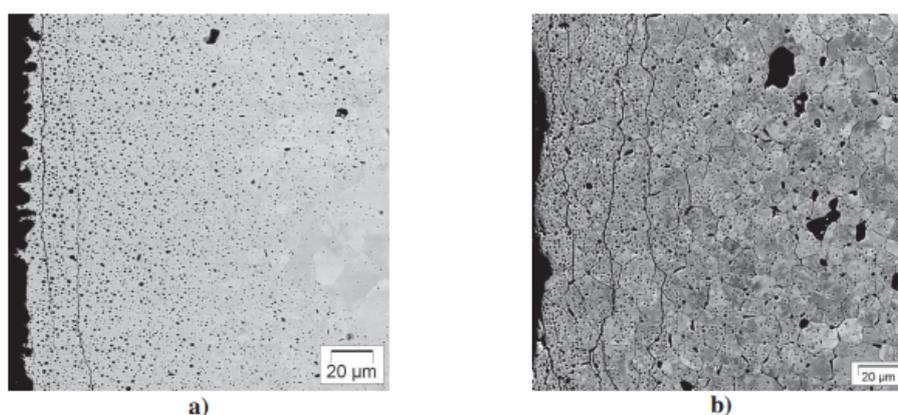


FIGURE 1.5-4 IMAGES MEB DU RIM A) AVANT ET B) APRES LE TRAITEMENT THERMIQUE DE L'ÉCHANTILLON UO_2 IRRADIÉ A $57,4\text{ GW}_j/t_U$ [75]

1.5.1 Localisation du gaz relâché

Les analyses microstructurales réalisées avant et après un traitement thermique montrent très clairement deux zones de relâchement cohérentes avec les observations réalisées durant la campagne GASPARD. Ces deux zones sont définies sur Figure 1.5-5 sur les comparaisons des données SIMS avant et après le transitoire thermique. Ces deux zones apparaissent comme :

- la zone centrale ($0 < r/R < 0,47$),
- la zone de RIM ($0,96R < r/R < 1R$).

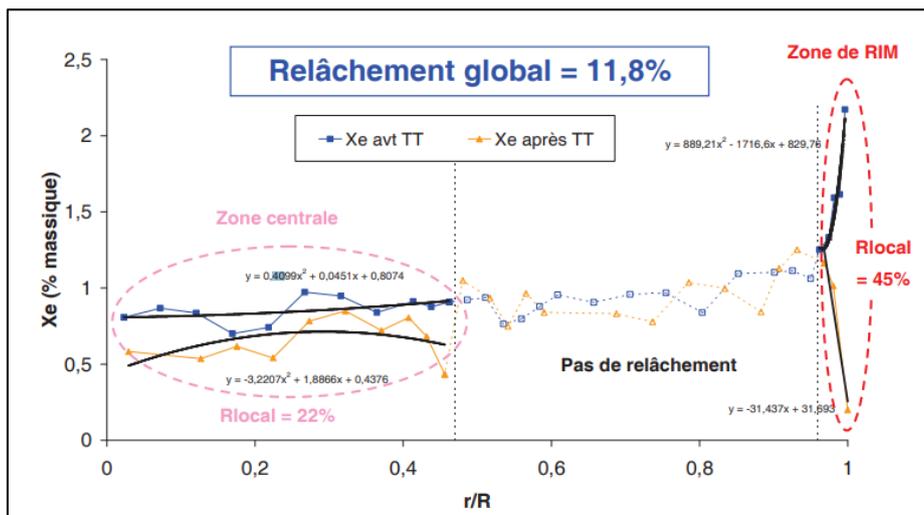


FIGURE 1.5-5 COMPARAISON DES MESURES DU XENON AU SIMS ACQUISES SUR UN ECHANTILLON UO_2 IRRADIE A $57,4 \text{ GW}_j/t_U$ AVANT ET APRES LE TRAITEMENT THERMIQUE DE TYPE APRP [75]

De plus, le programme international NFIR apporte une analyse potentielle sur les zones combustibles qui contribuent au relâchement en traitement thermique, notamment le comportement de la zone de HBS [94]. Lors de ce programme, les échantillons combustibles prennent la forme de disques fins qui ont été irradiés en réacteur de recherche entre deux plaques de molybdène. La géométrie de l'échantillon et le gradient de température qui lui est imposé lui permettent d'avoir un taux de combustion homogène sur l'ensemble de l'échantillon.

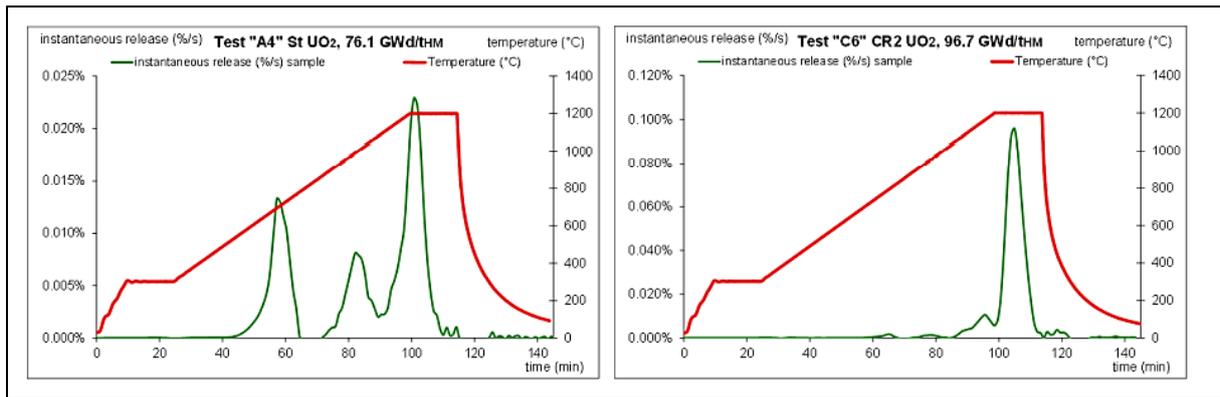


FIGURE 1.5-6 MESURE DU RELACHEMENT INSTANTANE DE ⁸⁵Kr AU COURS D'UN TRAITEMENT THERMIQUE D'UN DISQUE NFIR 76 GW_j/t_U (GAUCHE) ET D'UN DISQUE NFIR 96 GW_j/t_U (DROITE) [94]

Dans le cas de l'échantillon A4 de la Figure 1.5-6, le combustible à 76 GW_j/t_U n'est pas entièrement restructuré. Au cours du traitement thermique, on observe la structure temporelle classique de relâchement par bouffées à différents niveaux de température. S'agissant de l'échantillon C6 de la même figure, son irradiation est telle que l'ensemble du disque combustible a été restructuré, en d'autres termes il s'agit d'un échantillon entièrement composé d'HBS. On observe alors que seule la bouffée haute température relâche. Ces résultats nous permettent d'associer au moins la bouffée haute température à la zone HBS, pour l'essentiel de son relâchement.

1.5.2 La fragmentation du combustible

Au niveau d'une pastille de combustible, la décohésion des joints de grains peut entraîner une fragmentation, plus ou moins fine, de l'échantillon après un traitement thermique. Les fragments varient en taille selon les cas. La fragmentation du combustible est presque inévitable lorsque la gaine est entaillée. Cependant, une gaine intacte ou l'application d'une pression externe autour de l'échantillon (comme dans les essais sous pression isostatique externe, dans le four MEXIICO [95]) semblent limiter la fragmentation de l'échantillon.

Dans le contexte du "NRC LOCA Program" de Studsvik, des tests semi-intégraux en laboratoire ont été menés pour étudier le comportement de la gaine lors de son expansion et éclatement en conditions d'APRP. Ces essais ont impliqué une section de crayon combustible pressurisée d'environ 500 mm de long, placée dans un four de traitement thermique spécialement conçu. Cette section a été irradiée jusqu'à 92 GW_j/t_M (Figure 1.5-7).



FIGURE 1.5-7 DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET SCHEMA DU CRAYON ECHANTILLON INSTRUMENTE [96]

Le crayon échantillon est d'abord chauffé jusqu'à 300°C à une vitesse de 5°C/s. À cette température, l'APRP est simulé par vidange de l'eau autour du crayon échantillon jusqu'à induire le ballonnement et la rupture de la gaine, la température est ainsi amenée à 1200°C. De petites quantités d'eau sont injectées régulièrement afin de simuler l'oxydation de la gaine par la vapeur du circuit primaire. Il est observé un éclatement de la gaine et une forte pulvérisation à des températures inférieures à 800°C. La Figure 1.5-8 illustre la pulvérisation du combustible et sa relocalisation.

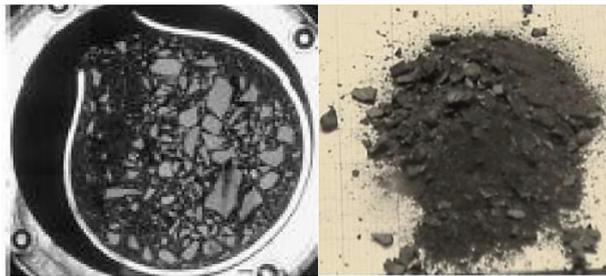


FIGURE 1.5-8 COMBUSTIBLE PULVERISE AU NIVEAU DE L'ECLATEMENT DE LA GAIN ET RELOCALISATION [96]

Les conditions d'oxydation et le fort taux de combustion local peuvent en partie expliquer la fragmentation précoce de l'échantillon.

1.6 PROBLEMATIQUE DE LA THESE

Comme nous l'avons vu, l'étude des relâchements des gaz de fission du combustible irradié, en transitoire thermique incidentelle, s'est historiquement concentrée sur la question des inventaires gazeux (quantité relâchée, localisation). Finalement il y a très peu de travaux dans la littérature relative à l'analyse des cinétiques de relâchement, ni même des cinétiques propres aux différentes bouffées observées expérimentalement. Un mécanisme est privilégié pour interpréter ces relâchements, le mécanisme de décohésion des joints de grains, mais il y a peu de données qui viennent contribuer à sa validation de manière quantitative.

La piste que nous voulons explorer est celle de l'analyse cinétique du relâchement de chaque bouffée. La forme des relâchements peut-elle nous en apprendre plus sur l'écoulement des gaz et les mécanismes sous-jacents ? Est-ce que les données de relâchement dans MERARG peuvent nous fournir des données quantitatives pour éclairer les mécanismes de relâchement ?

Pour répondre à ces questions, nous nous appuyerons sur l'analyse de la base de données des essais dans MERARG, que nous utiliserons pour proposer une modélisation phénoménologique de la cinétique de relâchement des bouffées. MERARG nous offre en effet une base de donnée abondante et précise de la cinétique et du taux de relâchement des gaz de fission en transitoire thermique représentative d'une séquence d'APRP. Ainsi, les travaux de ce manuscrit s'attacheront à vérifier la cohérence entre la cinétique de relâchement observé dans MERARG et une logique de réservoir de gaz qui se vident sous l'effet de leur pression, en cohérence avec le mécanisme de décohésion des joints de grains.

Dans le chapitre suivant, nous présenterons une amélioration du traitement des données cinétique de relâchement dans MERARG, puis nous décrirons de manière phénoménologique le relâchement en bouffées à partir de l'exploitation quantitative de la base de données des traitements thermiques. Au chapitre 3, nous proposerons un modèle cinétique cohérent avec une approche mécanistique du relâchement capable de décrire la cinétique du relâchement des gaz de fission. Au chapitre 4, nous confronterons le modèle cinétique avec les données expérimentales de chaque phase.

CHAPITRE 2 : DESCRIPTION PHENOMENOLOGIQUE DE LA STRUCTURE TEMPORELLE DU RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION

Dans ce chapitre, nous souhaitons présenter une description phénoménologique du relâchement en bouffée à partir de l'analyse quantitative des traitements thermiques réalisés dans MERARG sur combustible UO_2 . Nous voulons interpréter avec la plus grande précision possible les courbes de relâchement, nous souhaitons dans cet objectif disposer d'une méthode plus robuste pour analyser la cinétique des relâchements gazeux. Cette méthode doit être commune à l'ensemble des traitements thermiques que nous analyserons.

Nous avons évoqué au chapitre 1 (section 1.4.3), les courbes de relâchement déconvoluées qui occasionnent une cinétique extrêmement altérée (5 à 10%), limitant ainsi leur interprétation. Nous souhaitons tout d'abord dans ce chapitre comprendre l'origine de ce phénomène parasite et proposer des améliorations de la méthode de déconvolution analytique. Nous présenterons une nouvelle méthode, implémentée à l'aide du logiciel Matlab, afin de pallier les incertitudes de la méthode actuelle.

Nous présenterons ensuite la base de données des traitements thermiques réalisés dans MERARG sur des échantillons UO_2 . Sur la base de la nouvelle méthode de reconstruction des courbes de relâchement des gaz de fission, nous proposerons une description phénoménologique pour chaque bouffée de relâchement, de leur quantité de gaz associé et de leur cinétique, en fonction des différents paramètres expérimentaux. Nous présenterons certains traitements thermiques réalisés au cours de la thèse et nous mettrons en exergue quelques faits saillants relatifs au comportement cinétique du relâchement susceptible de nous aider à mieux comprendre les mécanismes sous-jacents.

2.1 LES INCERTITUDES DE DECONVOLUTION ANALYTIQUE

Pour comprendre l'origine de ce signal altéré, il est nécessaire de s'intéresser aux incertitudes liées à la méthode de déconvolution analytique.

Les incertitudes de mesures du détecteur de spectrométrie gamma sont bien documentées. Les incertitudes sur la mesure en ligne et l'efficacité de la détection sont évaluées à environ 8,58%. [85] Nous présenterons ici uniquement les incertitudes liées à la méthode de déconvolution analytique.

2.1.1 Incertitudes numériques

La déconvolution s'appuie essentiellement sur les calculs des dérivées du signal mesuré (équation 3 de la section 1.4.3) et donc sur la variation des valeurs de relâchement mesuré sur un intervalle de temps donné. La stratégie de comptage mise en place pour

limiter les incertitudes de mesure au niveau du spectromètre gamma consistait dans certains traitements thermiques à faire varier le pas de temps de la mesure, en le réduisant lorsque le relâchement était important et à l'inverse en l'augmentant lorsque le relâchement était faible ou inexistant. Les 5% de traitements thermiques dont le calcul de la déconvolution résulte en une courbe fortement altérée ont pour point commun un pas de temps très inférieur à une minute entre chaque mesure. Un intervalle de temps de mesure trop faible entre chaque mesure et des variations trop importantes de ses valeurs entraînent des erreurs numériques dans le calcul de ses dérivées et donc le parasitage des données déconvoluées. Au-delà de sa faible valeur, dans certains cas le pas de temps n'était pas uniforme tout le long du traitement thermique. Cette variation du pas de temps de la mesure induite de facto de fortes perturbations dans le calcul des dérivées de la courbe expérimentale

2.1.2 Incertitudes liées au débit de la ligne

La méthode de déconvolution analytique repose notamment sur l'hypothèse d'un débit de gaz constant dans la ligne, fixé expérimentalement à 1cm^3 par seconde. Dans les faits, les valeurs de débit varient très légèrement autour de sa consigne notamment en raison de la variation de température dans le four. Cette faible variation, inhomogène le long de la ligne, est particulièrement observable lors des changements brutaux de température. C'est la raison pour laquelle on observe parfois des valeurs négatives lors de ces variations, le plus souvent en fin de traitement thermique, au moment de la chute brutale de température comme illustrée sur la Figure 2.1-1. Sans une parfaite connaissance des variations de débit pendant les variations de température il est difficile de pallier cette anomalie. L'apparition des valeurs négatives reste néanmoins très localisée et ne nuit pas fondamentalement à l'interprétation des courbes de relâchement.

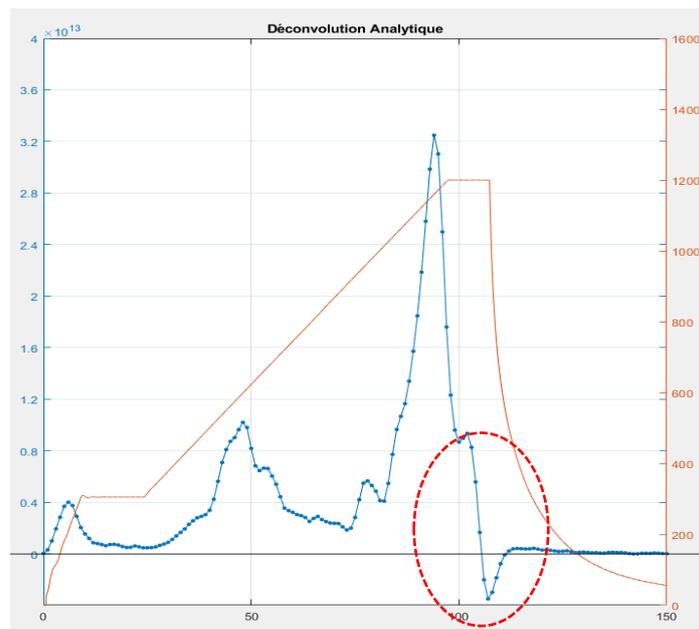


FIGURE 2.1-1 OBSERVATION DE VALEUR NEGATIVE LORS DE CHUTE DE TEMPERATURE LORS D'UN TRAITEMENT THERMIQUE

Néanmoins et pour pallier ces incertitudes, nous avons tout d'abord développé une nouvelle méthode de déconvolution, baptisée « méthode d'ajustement inverse » (Déconvolution par Forward Fitting). En s'affranchissant des incertitudes évoquées précédemment, cette méthode reformule la problématique de la déconvolution comme un problème inverse mal posé. Si cette méthode présente l'intérêt d'empêcher l'apparition de valeurs négatives de relâchement, d'autres incertitudes interviennent et peuvent difficilement être traitées. C'est la raison pour laquelle nous ne détaillerons pas ici cette méthode. Ce travail, disponible en Annexe 1, a été valorisé par une publication scientifique. [97] Nous avons alors développé une seconde approche qui se focalise sur l'amélioration du traitement numérique de la méthode de déconvolution analytique, détaillée ci-après.

2.2 INTERPOLATION DES DONNEES EXPERIMENTALES

Si nous ne pouvons pas traiter les incertitudes du débit, nous avons réduit les incertitudes numériques avec une nouvelle méthode qui s'appuie sur l'interpolation des données expérimentales. L'interpolation numérique consiste à transformer une série de données finie en une fonction continue. Il existe plusieurs techniques pour effectuer l'interpolation des points expérimentaux en une courbe continue [98]. La Figure 2.2-1 montre deux exemples simples d'interpolation, linéaire et spline. Dans le cas de nos données de mesure, nous avons retenu la méthode d'interpolation spline, aussi appelé interpolation polynomiale par parties, en raison de sa simplicité et la robustesse de ses résultats. Dans le domaine de l'analyse numérique, l'interpolation par spline est une méthode couramment utilisée pour construire de nouveaux points à l'intérieur des limites d'un ensemble de points connus en additionnant plusieurs segments de polynômes [99]. Ces nouveaux points sont des valeurs fonctionnelles d'une fonction d'interpolation (appelée spline), qui est elle-même constituée de plusieurs segments de polynômes. Le degré de ces segments de polynômes peut varier pour permettre à la fonction d'interpolation de rejoindre l'ensemble des données à interpoler. [100]

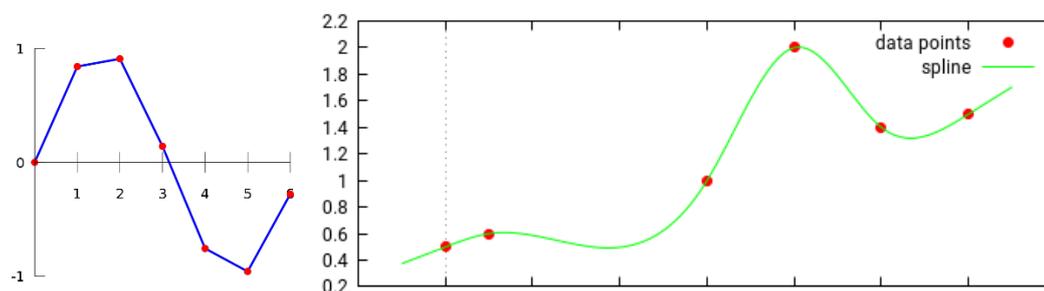


FIGURE 2.2-1 EXEMPLE D'INTERPOLATION LINEAIRE (BLEU) ET SPLINE (VERT) A PARTIR DE DONNEES DISCRETES (POINTS ROUGES)

2.3 LISSAGE DE LA FONCTION D'INTERPOLATION

Les splines sont également couramment utilisées dans les problèmes de lissage de données expérimentales, en jouant sur le degré des segments de polynôme utilisé pour l'interpolation. Plus on réduit le degré des segments de polynômes, plus la courbe est lissée, comme illustrée à la Figure 2.3-1. Il est donc très aisé de lisser les données, mais comment définir un curseur de lissage qui permette de gommer les signaux parasites sans perdre trop d'information sur la cinétique de relâchement qui nous intéresse ? Pour répondre à cette question, nous avons besoin de connaître la réponse impulsionnelle (lié à la fonction de transfert) du système four/chambre de comptable de MERARG.

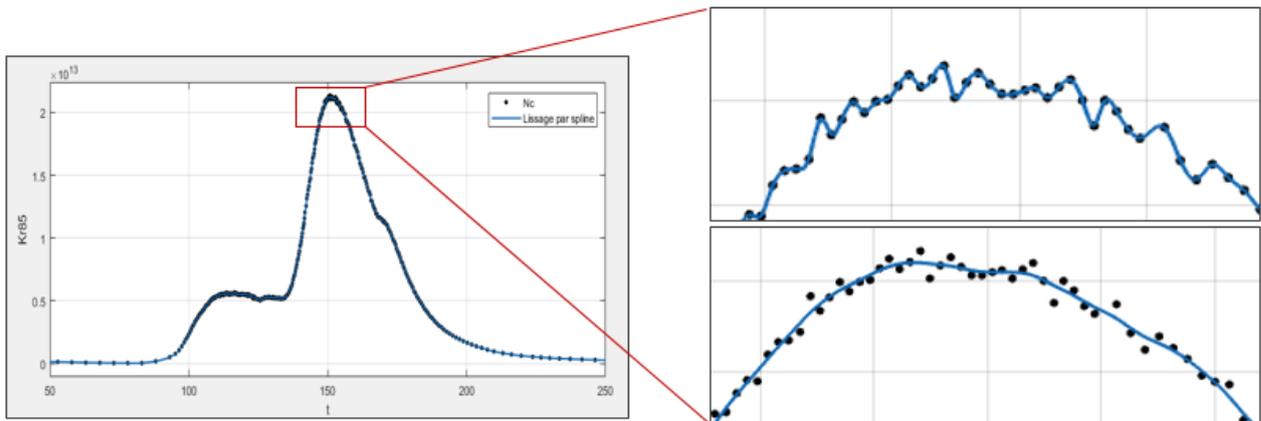


FIGURE 2.3-1 FONCTION D'INTERPOLATION PAR SPLINE (COURBE BLEUE) SANS LISSAGE (EN HAUT) ET AVEC LISSAGE (EN BAS)

2.3.1 La réponse impulsionnelle du système

En traitement du signal, une fonction de transfert d'un système linéaire est une fonction mathématique qui modélise la sortie du système pour chaque entrée possible. Un tel système est caractérisé par une réponse impulsionnelle : la transformation du signal d'entrée $x(t)$ en signal de sortie $y(t)$ s'effectue alors par une opération mathématique de convolution avec le noyau qui contient la réponse impulsionnelle (cf Chapitre 1.4.3). En d'autres termes, la réponse impulsionnelle de la mesure du relâchement des gaz de fission dans MERARG rend compte de la transformation que subit le signal « relâchement » depuis le four où il a lieu, jusqu'à sa mesure dans la chambre de comptage : la dilution du gaz avec le gaz vecteur, le transport du gaz dans les géométries du four et des conduites, le temps de transport des gaz, etc.

Pour évaluer la réponse impulsionnelle, nous pouvons utiliser des expériences de qualifications avec une ampoule étalon de ^{85}Kr de volume et d'activité connus (de l'ordre de $1,5 \cdot 10^8$ Bq dans 30 cm^3), placée dans le four lors d'un essai à blanc (un traitement thermique sans combustible). L'ampoule est alors brisée pendant l'expérience afin de relâcher instantanément le gaz qu'elle contient. La réponse impulsionnelle mesurée ensuite dans la chambre de comptage correspond approximativement à la transformée de Laplace inverse de la fonction de transfert du système, normalisée au volume et à l'activité de l'ampoule étalon.

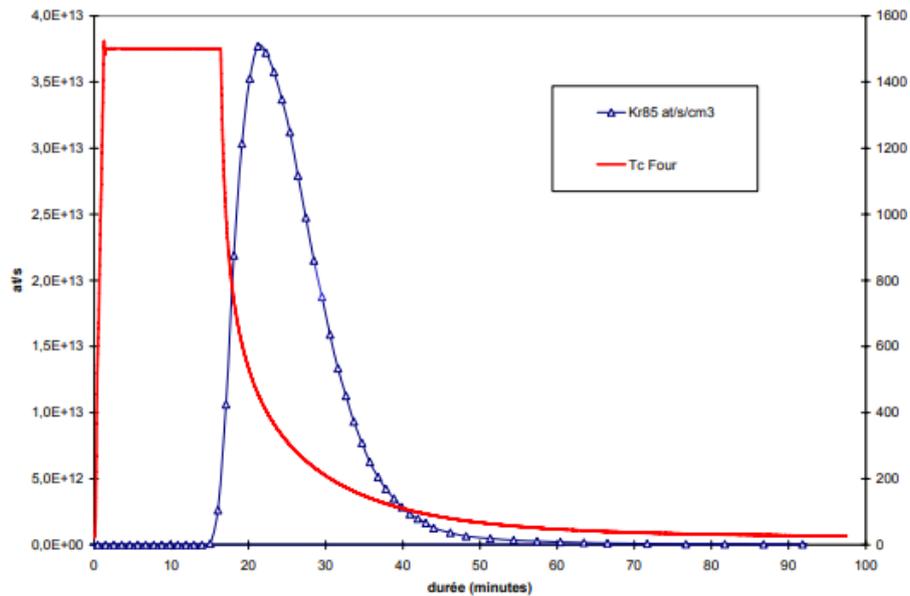


FIGURE 2.3-2 CINETIQUE MESUREE LORS DE LA FONTE D'UNE AMPOULE ETALON DANS LE FOUR

Comme attendu, la mesure n'indique pas un relâchement instantané, mais une courbe adoptant une forme plus étalée. Pour confirmer l'allure de réponse impulsionnelle, il est également possible de la déterminer analytiquement à partir de l'équation de dévolution analytique en utilisant le domaine de Laplace.

De cette manière il est possible de déterminer la forme analytique de la réponse impulsionnelle ainsi [101]:

$$f(t) = \frac{1}{b} \times e^{-at} \times \sinh(bt) \quad (4)$$

Cette fonction s'ajuste de manière satisfaisante avec la réponse impulsionnelle de l'ampoule étalon.

Ainsi déterminée, nous évaluerons la largeur à mi-hauteur de la réponse impulsionnelle, ainsi que la valeur à mi-hauteur de sa dérivée seconde. Ces informations seront importantes pour déterminer un critère physique pour le lissage des données lors de la déconvolution.

2.3.2 Définition d'un critère physique pertinent

Nous allons déterminer à partir de la réponse impulsionnelle de la boucle MERARG un critère physique permettant de lisser les données de manière satisfaisante. Nous avons vu que par définition, un relâchement instantané dans le four (à l'instar de l'ampoule étalon de krypton) adopte la forme de la réponse impulsionnelle lors de sa mesure par spectrométrie gamma, comme illustrée en Figure 2.3-3. Ainsi il n'est physiquement pas possible d'observer une évolution instantanée dans la chambre de comptage. La

réponse impulsionnelle nous fournit donc une information physique minimale que la mesure ne peut pas adopter. Nous partirons du critère de la largeur à mi-hauteur de la réponse impulsionnelle du système. Si l'on observe dans la courbe de mesure un pic dont la largeur à mi-hauteur est inférieure au critère défini (la largeur à mi-hauteur de la réponse impulsionnelle) alors il s'agit d'une anomalie et nous incrémenterons le lissage de la fonction d'interpolation. Ainsi, nous lisserons jusqu'à ce qu'il n'y a plus d'anomalie dans la forme de la courbe mesurée dans la chambre de comptage. Pour plus de précisions, nous userons du même raisonnement sur la dérivée seconde de la courbe de mesure expérimentale et de la réponse impulsionnelle. Le critère étant désormais la largeur à mi-hauteur de la dérivée seconde de la réponse impulsionnelle. Tant que la dérivée seconde de la courbe de mesure présente des pics dont la largeur à mi-hauteur est inférieure au critère, nous incrémenterons le lissage.

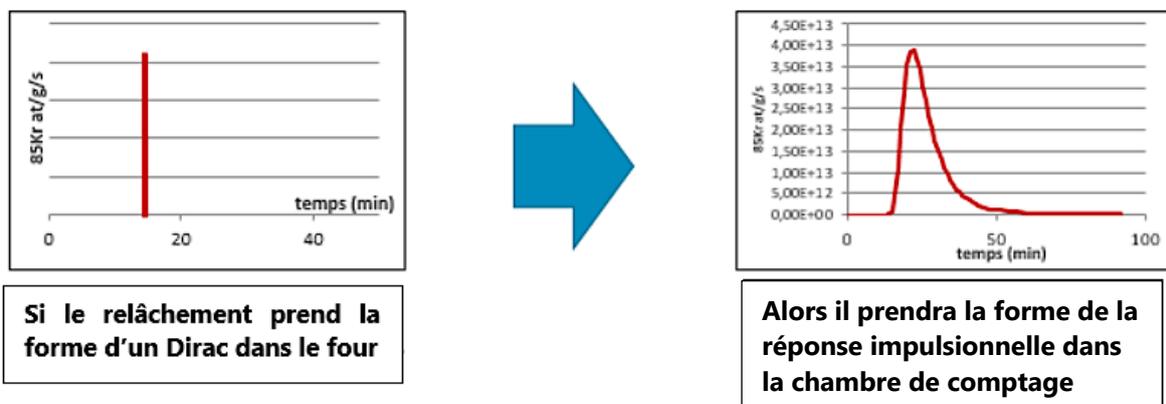


FIGURE 2.3-3 ILLUSTRATION DE LA REPONSE IMPULSIONNELLE DANS LE SYSTEME MERARG

2.3.3 Ré-échantillonnage de la courbe avec un pas de temps uniforme

Après avoir interpolé et lissé les données expérimentales, nous obtenons une fonction continue. Pour faciliter le calcul et limiter les incertitudes liées à l'interpolation des données, il est nécessaire de procéder à la discrétisation de cette fonction. La définition d'un nouveau pas de temps (intervalle de temps entre deux points de mesure) est nécessaire. En effet, comme expliqué précédemment, le pas de temps peut varier lors de la mesure selon la stratégie d'acquisition adoptée avec le détecteur de spectrométrie gamma. Pour rester le plus proches possible des données expérimentales, nous déterminons un nouveau pas de temps uniforme, dont l'espacement entre chaque point correspond à l'écart type du pas temps initial. Cela nous donne en un intervalle de temps d'environ une minute entre chaque valeur du relâchement.

2.3.4 Calcul de la déconvolution analytique

Désormais lissés et ré-échantillonnés nous pouvons dériver convenablement les valeurs de relâchement et appliquer l'équation de déconvolution analytique (équation 3).

La

Figure 2.3-4 illustre sur un exemple la méthode déconvolution analytique avant et après l'amélioration du traitement numérique des données.

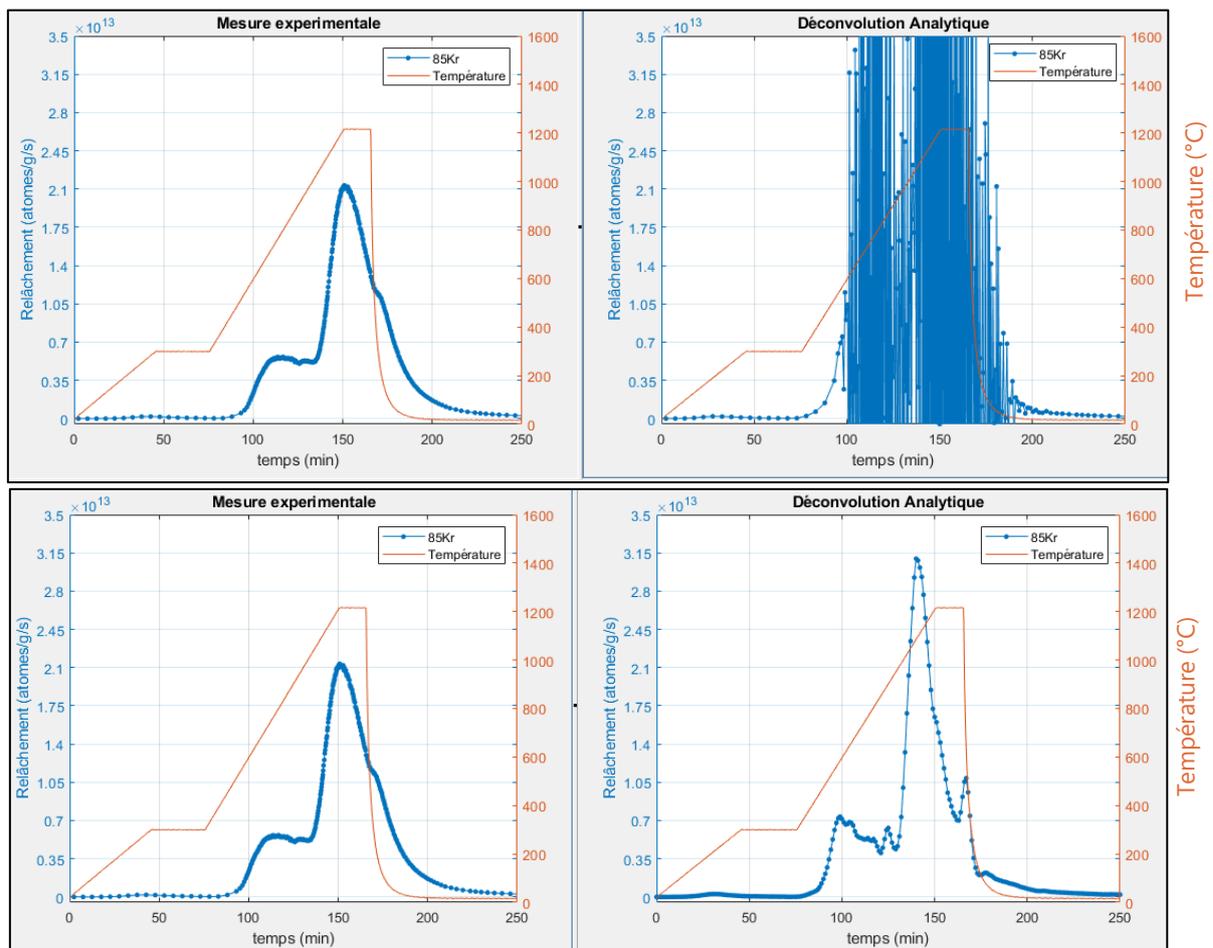


FIGURE 2.3-4 GRAPHIQUE REPRESENTANT LA MESURE DU 85KR DANS LA CHAMBRE DE COMPTAGE (A GAUCHE) ET SA DECONVOLUTION ANALYTIQUE (A DROITE) APRES TRAITEMENT NUMERIQUE DES DONNEES (EN BAS – A DROITE).

Comme il s'agit d'un problème inverse mal posé, il est difficile d'évaluer les incertitudes apportées par l'amélioration de la méthode de déconvolution analytique. En terme quantitatif, la quantité de gaz mesurée avant et après déconvolution reste évidemment identique. D'un point de vue cinétique, la nouvelle méthode rend plus lisible et plus fiable la déconvolution du relâchement mesuré, sans qu'il soit possible d'en déterminer des incertitudes précises. Seul un examen approfondi de l'installation MERARG visant à déterminer avec précision la réponse impulsionnelle du système, la variation du débit

dans la ligne, la géométrie des canalisations, les éventuelles fuites, pourrait permettre d'affiner davantage la qualité de la déconvolution.

Nous disposons désormais d'une méthode robuste qui corrige notamment les 5 à 10% de courbes altérées au cours de la déconvolution analytique. Dès lors, à la lumière de cette méthode de déconvolution analytique améliorée, nous pouvons analyser l'ensemble des traitements thermiques réalisés dans MERARG. La prochaine partie sera dédiée à présenter la base de données des traitements thermiques que nous analyserons ainsi.

2.4 PRESENTATION DE LA BASE DE DONNEES

Avec plus de 25 ans d'exploitation du four MERARG, de nombreuses campagnes de traitements thermiques sur combustible irradié ont eu lieu. Le LAMIR dispose désormais d'une base de données de plus de 200 traitements thermiques (TT) réalisés sur de nombreux types de combustibles et avec des protocoles expérimentaux variés. Nous consacrerons cette partie à présenter et décrire la base de données relative au combustible UO_2 irradié uniquement. Nous excluons, en plus, les traitements thermiques de la campagne ADAGIO, en raison de son protocole expérimental très différent des autres campagnes, qui implique plusieurs phases et des conditions d'atmosphère particulière. Le Tableau 2.4-1 dresse la synthèse des 79 traitements thermiques qui répondent à ces critères. On distinguera quelques conditions expérimentales notables pour différencier ces TT, à savoir : le type de combustible utilisé, son taux de combustion, le protocole thermique, l'altération de la gaine ou de l'échantillon, l'atmosphère du TT et la réirradiation de l'échantillon.

Type de combustible

En plus d'échantillons UO_2 classiques, enrichis entre 3,7 et 4,95 %, d'autres types de combustibles ont été utilisés à l'instar de combustibles UO_2 dopé au chrome ou encore d' UO_2 enrichi en gadolinium, un poison neutrophage.

Taux de combustion

Le taux de combustion de ces échantillons varie entre 37 GW_j/t_U pour le plus faible et 104 GW_j/t_U pour le plus élevé. En moyenne, la plupart de ces 79 traitements thermiques concernent des combustibles à 65 GW_j/t_U .

Protocole thermique

On distinguera trois informations importantes relatives au protocole thermique : la vitesse de rampe (entre 0,2 et 20°C/s), la température maximale (entre 750 et 1600°C) et le temps de maintien en palier isotherme (entre 0 et 300 minutes).

Intégrité de la gaine et de l'échantillon

Quelques échantillons ne sont pas accompagnés de leur gaine lors du TT. Pour d'autres, la gaine a été altérée en amont du TT. Une entaille, plus ou moins large a été réalisée radialement de manière à limiter la contrainte de la gaine sur le combustible et d'en étudier l'impact sur le relâchement et la fragmentation du combustible.

Un des TT a été réalisé sur des fragments issus d'un carottage de la zone centrale d'une pastille. Cet échantillon est donc sous forme de petits fragments combustibles sans gaine. À l'inverse, on a réalisé des échantillons « anti-carottés », c'est-à-dire des échantillons dont on a retiré la zone centrale sur un rayon variable. Ces derniers conservent leur gaine, qui peut néanmoins être entaillée.

Atmosphère du four

Comme nous l'avons évoqué au chapitre 1 dans la présentation de MERARG, pour contrôler l'atmosphère lors d'un TT, le four et les canalisations sont préalablement tirés au vide. On balaye ensuite la ligne avec un gaz neutre, le plus souvent de l'argon, à un débit constant. Quelques TT font figure d'exceptions à ce protocole : pour l'un d'entre eux, on a utilisé de l'air comme gaz vecteur. Il a donc été réalisé en condition oxydante pour l'échantillon. À l'inverse d'autres ont été réalisés avec l'ajout de 2% d'hydrogène dans l'argon, afin de créer une atmosphère réductrice. Le suivi de l'évolution de l'atmosphère du four MERARG est récent (2022), avec l'implantation des pompes Gen'Air et Jok'Air évoqué au chapitre 1, et ne concernent donc que les traitements thermiques les plus récents de cette base de données.

Réirradiation de l'échantillon

La réirradiation de certains échantillons concerne exclusivement la campagne GASPARD. L'objectif de cette réirradiation courte avant un TT permet de créer des gaz de fission à vie courte (^{133}Xe) et d'en faire un marqueur de gaz intragranulaire, comme cela a été rappelé dans le chapitre 1 (section 1.5). Seuls 8 TT sont concernés par cette réirradiation.

Cette base de données présente donc des protocoles expérimentaux relativement variés et il ne serait pas rigoureux de procéder à une comparaison des relâchements mesurés en faisant fi de l'ensemble des critères évoqués. Une analyse fine est indispensable pour déterminer les motifs et les ordres de grandeur caractéristiques qui apparaissent dans les résultats de ces différents traitements thermiques.

TABLEAU 2.4-1 SYNTHESE DE LA BASE DE DONNEES DES TRAITEMENTS THERMIQUES REALISEE SUR DES ECHANTILLONS UO₂ IRRADIES

REF	COMB	BU	RAMPE (°C/s)	TEMP_MAX	PALIER (min)	REIRRADIATION	GAINÉ	B1%	B2%	B3%	RGF%
1	UO2	49	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	1,9%	1,0%	5,9%	8,8%
2	UO2	49	10	1200	10	NON	INTEGRE	1,7%	/	3,4%	5,1%
3	UO2	49	20	1200	10	NON	INTEGRE	1,2%	/	3,4%	4,7%
4	UO2	49	20	1200	0	NON	INTEGRE	1,3%	/	1,8%	3,2%
5	UO2	49	20	1000	15	NON	INTEGRE	1,4%	1,5%	/	2,9%
6	UO2	48	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,0%	1,1%	1,8%	2,9%
7	UO2	48	20	1400	15	NON	INTEGRE	0,0%	/	/	6,8%
8	UO2	48	20	1600	15	NON	INTEGRE	0,0%	/	/	4,7%
9	UO2	72	0,2	1200	15	OUI	INTEGRE	0,0%	5,8%	6,1%	11,9%
10	UO2	72	20	1200	10	OUI	INTEGRE	0,0%	/	10,0%	10,0%
11	UO2	72	20	1200	0	OUI	INTEGRE	0,0%	/	10,6%	10,6%
12	UO2	72	20	1000	15	OUI	INTEGRE	0,0%	10,7%	/	10,7%
13	UO2	72	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,1%	5,9%	11,3%	17,2%
14	UO2	72	0,2	1000	15	OUI	INTEGRE	0,0%	6,2%	/	6,2%
15	UO2	72	20	1600	15	OUI	INTEGRE	/	/	/	23,2%
16	UO2	72	20	1200	0	OUI	INTEGRE	0,0%	/	10,5%	10,5%
17	UO2	72	0,2	1200	10	OUI	INTEGRE	0,1%	5,6%	9,2%	14,8%
18	UO2	72	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,2%	4,6%	19,7%	24,5%
19	UO2	72	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,1%	3,6%	13,9%	17,6%
20	UO2 + Cr	62	20	1600	300	NON	INTEGRE	0,0%	/	/	55,3%
21	UO2 + Cr	62	0,2	1200	300	NON	INTEGRE	0,0%	4,8%	9,4%	14,2%
22	UO2 + Cr	62	20	1400	300	NON	INTEGRE	0,0%	/	/	38,2%
23	UO2	63	0,2	1200	300	NON	INTEGRE	0,3%	4,9%	14,0%	19,1%
24	UO2	72	20	750	15	NON	INTEGRE	/	6,1%	/	6,1%
25	UO2	63	20	1200	10	NON	INTEGRE	0,4%	/	11,0%	11,4%
26	UO2 + Cr	62	20	1200	10	NON	INTEGRE	0,0%	/	11,8%	11,8%
27	UO2	63	20	1600	15	NON	INTEGRE	0,1%	/	/	38,7%
28	UO2 + Cr	62	20	900	15	NON	INTEGRE	0,0%	5,7%	/	5,7%
29	UO2 + Cr	62	0,2	900	15	NON	INTEGRE	0,0%	3,0%	/	3,0%
30	UO2	72	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,1%	2,1%	7,2%	9,3%
31	UO2	72	20	1600	15	NON	INTEGRE	0,1%	/	/	17,7%
32	UO2	72	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,1%	4,0%	6,0%	10,1%
34	UO2	69	0,2	1200	10	NON	ENTAILLE	1,0%	6,0%	5,5%	12,5%
35	UO2	69	0,2	1200	10	NON	INTEGRE	1,1%	6,1%	12,3%	19,5%
36	UO2	42	0,2	1600	15	NON	INTEGRE	0,0%	0,2%	0,1%	14,3%
37	UO2 + Cr	48	0,2	1600	15	NON	INTEGRE	0,0%	0,5%	0,0%	8,0%
38	UO2	69	0,2	1200	10	NON	TROU	0,0%	8,9%	13,7%	22,7%
39	UO2	76	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,0%	5,9%	15,0%	20,9%
42	UO2	69	0,2	1200	10	NON	ENTAILLE+TROU	0,1%	10,8%	8,7%	19,6%
43	UO2	69	0,2	1200	10	NON	ENTAILLE+TROU	0,1%	9,6%	12,2%	21,8%
44	UO2 + Gd	50	20	1200	10	NON	INTEGRE	0,2%	/	1,5%	1,7%
45	UO2 + Gd	50	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,3%	0,7%	0,6%	1,6%
46	UO2	37	20	1200	10	NON	INTEGRE	0,0%	/	2,9%	2,9%
47	UO2 + Gd	78	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	1,9%	2,4%	4,2%	8,5%
48	UO2	72	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,0%	0,6%	0,5%	1,1%
49	UO2	44	0,2	1600	15	NON	INTEGRE	0,0%	0,2%	0,3%	18,0%
50	UO2	44	0,2	1600	15	NON	INTEGRE	0,2%	0,3%	0,3%	23,3%
51	UO2	73	0,2	1500	15	NON	INTEGRE	0,2%	3,5%	7,8%	32,9%
52	UO2	73	0,2	1500	15	NON	INTEGRE	0,2%	3,3%	9,0%	34,8%
54	UO2	104	20	1200	15	NON	INTEGRE	3,6%	/	22,2%	25,8%
57	UO2	58	1	1100	10	NON	ENTAILLE	0,0%	0,6%	0,2%	0,8%
58	UO2	61	1	1200	10	NON	ENTAILLE	1,2%	7,7%	2,2%	11,0%
59	UO2	61	1	1200	10	NON	CAROTTE	0,1%	11,5%	2,3%	13,9%
60	UO2	44	0,2	1400	15	NON	INTEGRE	0,5%	0,2%	0,3%	9,4%
61	UO2	73	5	1000	15	NON	ENTAILLE	0,1%	6,6%	/	6,7%
62	UO2	73	5	1000	15	NON	ENTAILLE	0,2%	7,5%	/	7,7%
63	UO2	73	20	1500	15	NON	INTEGRE	0,1%	/	/	14,2%
64	UO2	70	20	1500	15	NON	INTEGRE	0,2%	/	/	16,2%
65	UO2 + Cr	69	1	1000	15	NON	ENTAILLE	0,0%	2,7%	/	2,7%
66	UO2 + Cr	79	1	1000	15	NON	ENTAILLE	0,0%	7,5%	/	7,5%
67	UO2 + Cr	71	1	1000	15	NON	ENTAILLE	0,2%	4,1%	/	4,2%
68	UO2 + Cr	68	1	900	15	NON	ENTAILLE	0,0%	2,6%	/	2,6%
69	UO2 + Cr	71	1	800	15	NON	ENTAILLE	0,1%	3,4%	/	3,5%
70	UO2 + Cr	68	1	900	15	NON	ENTAILLE	0,0%	2,7%	/	2,7%
71	UO2 + Cr	68	1	900	15	NON	ENTAILLE	0,1%	3,5%	/	3,5%
72	UO2 + Cr	79	1	800	15	NON	ENTAILLE	0,0%	7,0%	/	7,1%
73	UO2 + Cr	68	5	1000	15	NON	ENTAILLE	0,1%	6,2%	/	6,3%
74	UO2	44	0,2	1800	0	NON	INTEGRE	0,5%	0,3%	0,0%	40,5%
75	UO2	72	0,2	1200	15	NON	INTEGRE	0,2%	3,2%	5,2%	8,6%
76	UO2	72	0,2	1500	15	NON	INTEGRE	0,0%	0,1%	1,9%	14,5%
77	UO2	72	0,2	1500	15	NON	INTEGRE	0,2%	3,4%	/	16,7%
78	UO2	72	0,2	850	0	NON	INTEGRE	0,4%	2,8%	/	3,2%
79	UO2	72	0,2	1200	300	NON	INTEGRE	0,3%	3,0%	9,9%	13,2%

2.5 PHENOMENOLOGIE DES BOUFFEES DE RELACHEMENT

L'objectif de cette description phénoménologique est de donner les principales caractéristiques du relâchement de gaz de fission par bouffées en fonction des différentes conditions expérimentales. Nous nous intéressons aux trois principales bouffées, représentées sur la Figure 2.5-1 que nous observons lors de la grande majorité des traitements thermiques de la base de données de MERARG. Nous décrivons les conditions dans lesquelles chaque bouffée apparaît, ainsi que les deux principales informations physiques qui les caractérisent, à savoir la quantité de gaz relâchés et leur cinétique. Nous définissons ces bouffées en fonction des gammes de températures auxquelles elles apparaissent :

- B1 : la première bouffée correspond au relâchement qui débute dès le début de la rampe de température pour s'achever à la fin du palier isotherme de 300°C.
- B2 : la seconde bouffée commence son relâchement peu après le début de la rampe de température après le palier à 300°C, généralement autour de 450 °C/500°C. Elle s'achève aux alentours de 800°C.
- B3 : Nous définissons la troisième bouffée comme le relâchement débutant à 1000°C et s'achevant pendant le palier isotherme de 1200°C.

Seules les rampes de température lentes appliquées à un échantillon combustible permettent de distinguer clairement les différentes bouffées.

S'agissant des quelques traitements thermiques dont la température est amenée à des valeurs supérieures à 1200°C, nous isolerons la quantité de B3 lorsque cela est possible (c'est-à-dire lorsqu'il existe un palier isotherme intermédiaire à 1200°C).

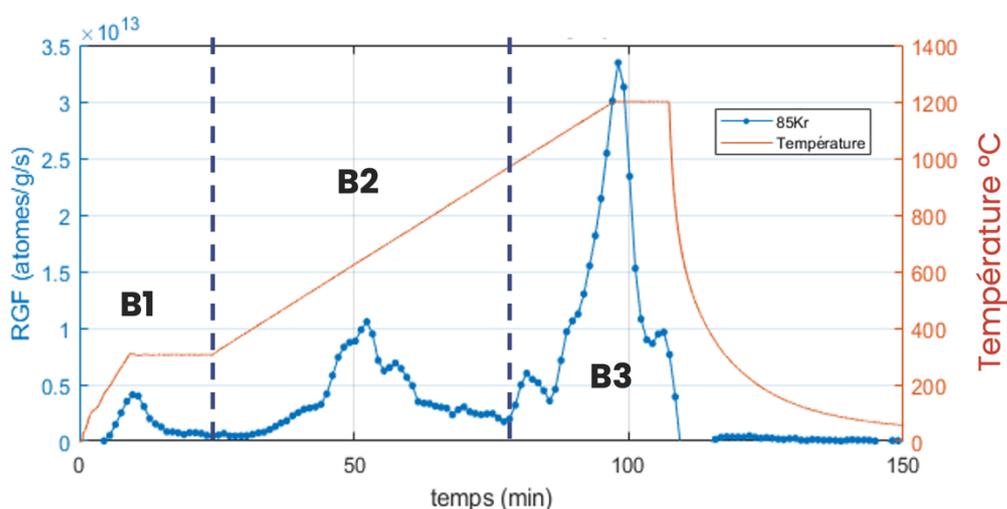


FIGURE 2.5-1 ILLUSTRATION DE LA STRUCTURE TEMPORIELLE CLASSIQUE DU RELACHEMENT EN TROIS BOUFFEES SUCCESSIVES

2.5.1 Le relâchement à 300°C : B1

Quantité de gaz relâché

Dans la base de données, B1 correspond à un relâchement compris entre 0 et 3,4%. En moyenne, B1 relâche pour 0,4% du 85Kr présent dans l'échantillon.

Son relâchement ne semble que peu affecté par le taux de combustion de l'échantillon. Cela s'illustre notamment par les relâchements significatifs de B1 lors des TT réalisés sur des échantillons dont le taux de combustion vaut $49 \text{ GW}_j/t_U$. À l'inverse, des échantillons à plus fort taux de combustion ($72 \text{ GW}_j/t_U$) B1 n'a pas ou peu relâché dans cette gamme de température. On notera que B1 est systématiquement absent quand l'échantillon a subi une réirradiation, ce point avait été noté dans les comptes-rendus de la campagne GASPARD.

Cinétique de la première bouffée de relâchement

Dans la majorité des cas, le relâchement de B1 adopte une cinétique proche de celle illustrée dans la figure 2a. La rampe de température est de 1°C/s jusqu'au palier de 300°C . Le relâchement est croissant pendant la rampe, atteint son maximum au début du palier isotherme, puis décroît pendant le reste de palier. Dans quelques TT, la rampe de température débute plus lentement, à $0,1^\circ\text{C/s}$. Dans ce cas précis, le relâchement se fait entièrement pendant la rampe et débute dès 100°C , comme l'illustre la figure 2b.

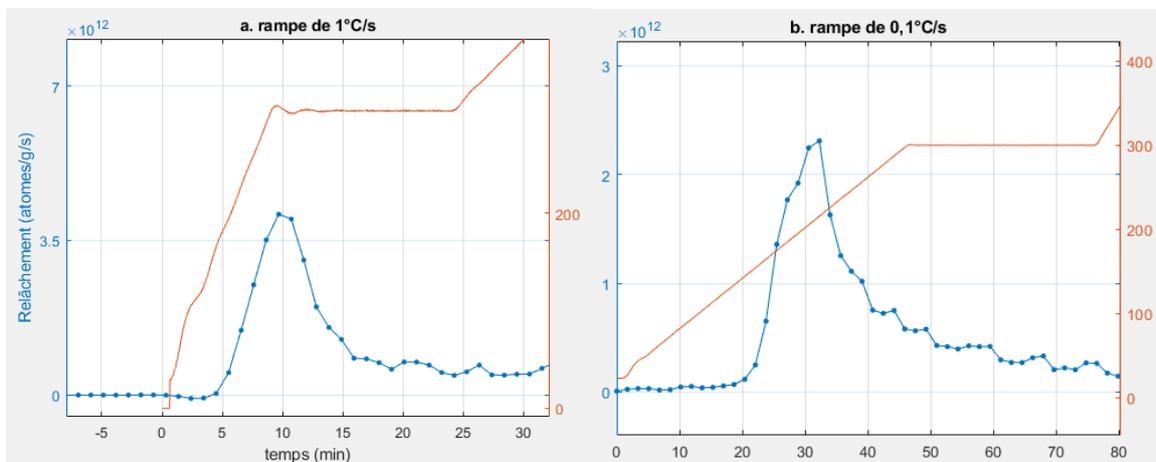


FIGURE 2.5-2 CINÉTIQUE DE B1 EN RAMPE DE 1°C/s (A) ET EN RAMPE DE $0,1^\circ\text{C/s}$ (B)

2.5.2 Le relâchement entre 500 et 900°C : B2

Quantité de gaz relâché

La quantité de ^{85}Kr relâché par B2 est corrélée au taux de combustion de l'échantillon, comme l'illustre la Figure 2.5-3. Sur cette figure nous avons sélectionné les TT dont les protocoles sont proches, c'est-à-dire une rampe de température lente, des échantillons complets (pas d'échantillon « carotté » ni « d'anti-carotte ») et sans les combustibles au gadolinium.

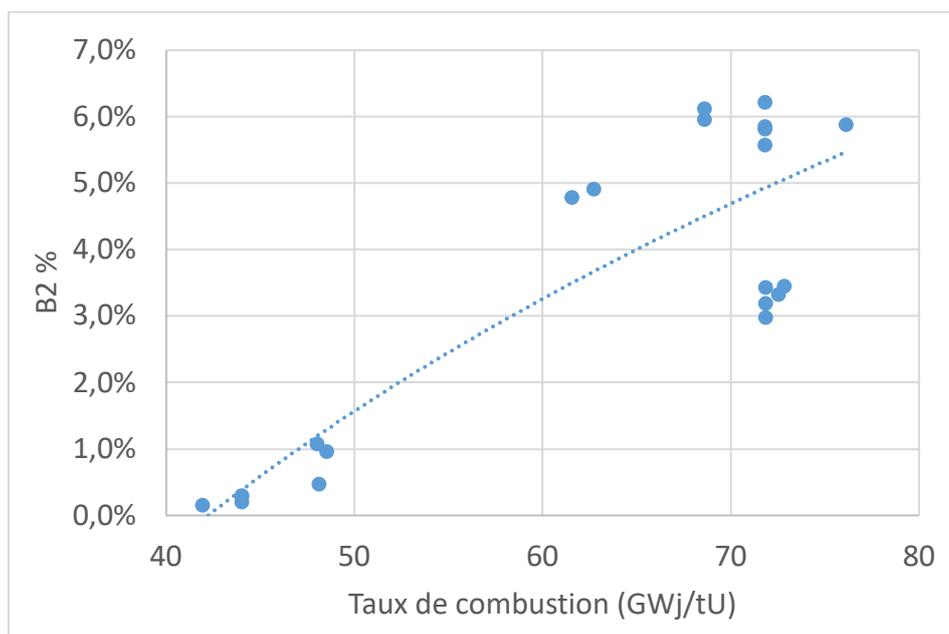


FIGURE 2.5-3 ILLUSTRATION DE L'INFLUENCE DU TAUX DE COMBUSTION SUR B2

En plus du taux de combustion, l'intégrité de l'échantillon combustible semble influencer la quantité de gaz relâchés par B2. En effet, que ce soit les TT réalisés sur des anti-carottes et le TT réalisés sur le carottage de la zone centrale d'une pastille : tous indiquent une augmentation d'environ 4% de relâchement supplémentaire par rapport à un échantillon intègre issu du même crayon père. Pour les anti-carottes, on atteint un relâchement de B2 d'environ 10%, et pour la carotte centrale de 11,5%.

Cinétique de la bouffée de relâchement

La description cinétique de B2 est plus complexe que les autres bouffées. En effet, B2 est plus « étalée », sa croissance est plus progressive et elle peut avoir une structure interne composé de plusieurs pics. Sa décroissance n'est quant à elle pas toujours clairement visible, car elle peut se confondre avec d'autres relâchements entre 800 et 1000°C, comme l'illustre les exemples de la Figure 2.5-4.

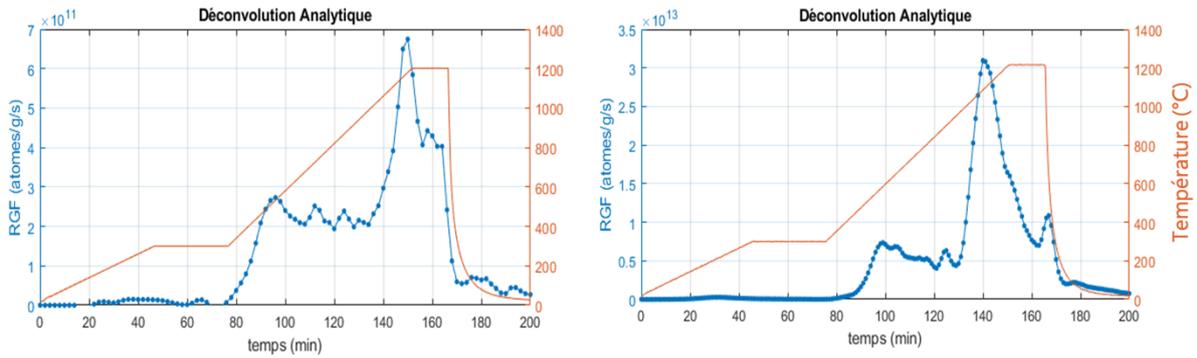


FIGURE 2.5-4 EXEMPLE DE CINETIQUES DE RELACHEMENT DE LA DEUXIEME BOUFFEE

Sur des échantillons issus des mêmes crayons combustibles, on retrouve un comportement cinétique très proche, comme l'illustre la Figure 2.5-5. Ces trois exemples sont issus des traitements thermiques réalisés à plusieurs années d'intervalle. On peut appréhender la forme du relâchement de B2 comme une empreinte caractéristique à des échantillons issus d'un même crayon et ayant subi un historique d'irradiation analogue.

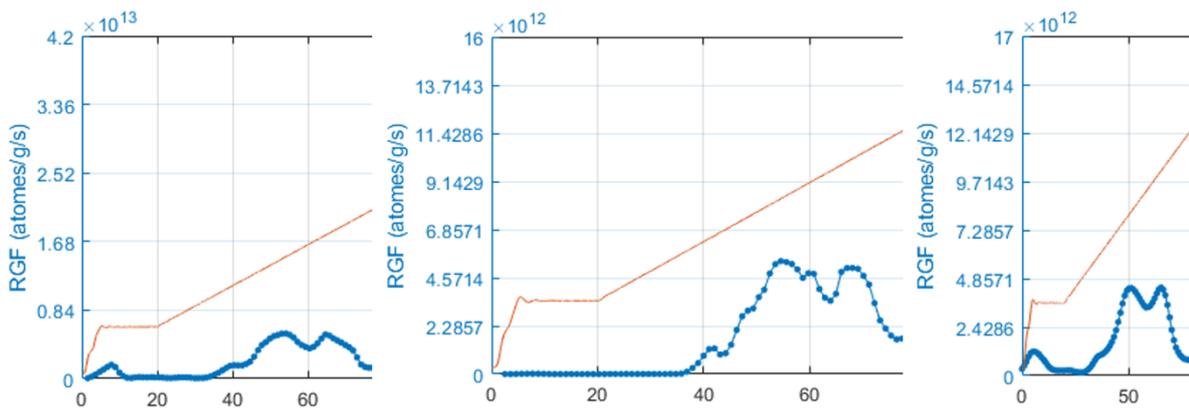


FIGURE 2.5-5 CINETIQUE DU RELACHEMENT DE B2 TRES RECONNAISSABLE POUR DES ECHANTILLONS ISSUS DU MEME CRAYON PERE

Finalement, on peut interpréter la cinétique complexe de B2, contrairement aux deux autres bouffées, comme une succession d'événements de relâchement, d'intensité qui peuvent varier d'un TT à l'autre.

2.5.3 Le relâchement au-delà de 1000°C : B3

Quantité de gaz relâché

En moyenne, la troisième bouffée correspond à un relâchement d'une dizaine de pour cent du gaz contenu dans l'échantillon. On observe cependant une forte dispersion de cette valeur, car le taux de relâchement de la troisième bouffée est influencé par de

nombreux facteurs. Tout d'abord et comme pour B2, B3 est influencé par le taux de combustion de l'échantillon. En dessous de $50 \text{ GW}_j/t_U$, B3 ne dépasse pas les 6%, alors qu'elle peut atteindre 20% pour des taux de combustion supérieurs à $70 \text{ GW}_j/t_U$. Ensuite, comme il s'agit d'une bouffée qui relâche pendant un palier isotherme à 1200°C , la quantité de gaz relâchée va également dépendre du temps de maintien en palier comme l'illustre la Figure 2.5-6. Sur des échantillons issus d'un même crayon père, l'un ayant subi un palier de 1200°C pendant 15 minutes et l'autre pendant 300 minutes, le relâchement de B3 vaut respectivement 5,2% et 9,9%. La Figure 2.5-6 est également illustrative de l'effet de la chute de température qui dans la plupart des cas fait chuter brutalement le relâchement jusqu'à une valeur nulle.

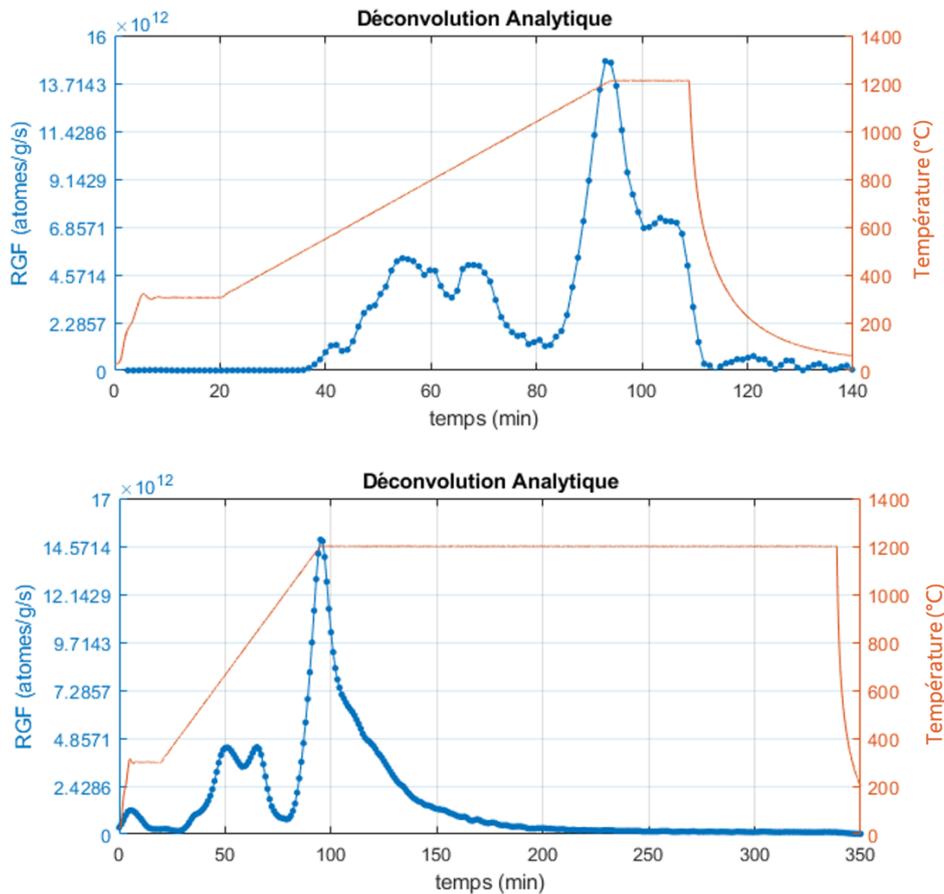


FIGURE 2.5-6 ILLUSTRATION DE L'IMPACT DU TEMPS DE MAINTIEN EN PALIER ISOTHERME A 1200°C SUR LE RELACHEMENT DE B3 ; PALIER DE 15 MINUTES (HAUT), PALIER DE 250 MINUTES (BAS)

Cinétique de la bouffée de relâchement

On peut décrire la cinétique de relâchement en trois phases :

- tout d'abord une croissance rapide autour de 1000°C ;
- B3 atteint ensuite son pic presque systématiquement au tout début du palier isotherme, au moment où la rampe s'arrête ;
- Enfin une phase de décroissance, qui peut être lente et progressive si le palier isotherme est maintenu, ou bien rapide si la chute en température intervient brutalement.

On appellera « vidange », la décroissance caractéristique pendant un palier isotherme maintenu plusieurs heures comme sur la Figure 2.5-6. On notera que la cinétique de relâchement de B3 est déterminée par le changement de régime thermique, c'est-à-dire qu'elle culmine au passage entre rampe et palier de température. La rampe de température semble accélérer le relâchement, à l'inverse du palier isotherme où la physique semble purement de type relaxationnel. La Figure 2.5-7 illustre ce phénomène et présente le relâchement de deux échantillons combustibles soumis à des paliers isothermes croissants successifs.

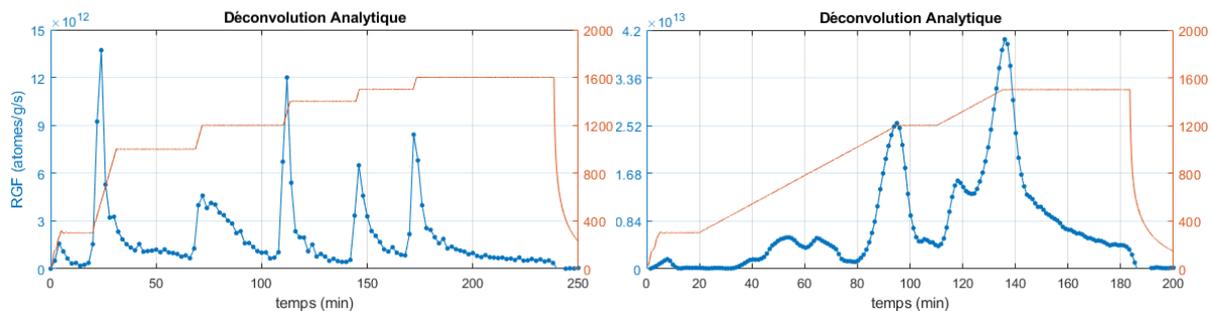


FIGURE 2.5-7 ILLUSTRATION DE LA CORRELATION ENTRE RELACHEMENT ET PALIERS ISOTHERMES POUR MIEUX COMPRENDRE CE PHENOMENE ESSENTIEL QUI STRUCTURE LE RELACHEMENT DE B3, NOUS PRESENTERONS DANS LA PARTIE SUIVANTE LES TRAITEMENTS THERMIQUES REALISES DANS CET OBJECTIF.

Cette corrélation systématique entre la vidange de B3 et du palier isotherme à 1200°C est éloquent et possède des implications physiques en termes d'écoulement du gaz à l'intérieur du combustible. Nous souhaitons analyser plus précisément ce phénomène dans la section suivante.

2.6 ÉTUDE DE L'IMPACT D'UN PALIER ISOTHERME SUR LE RELACHEMENT DE B3

Afin d'étudier la relation entre la vidange de B3 et le palier isotherme à 1200°C, nous avons réalisé un traitement thermique dédié. Nous avons choisi pour ce TT, un échantillon UO_2 irradié à 72 GW_j/t_U , déjà étudié par le passé. L'étude de la base de données des traitements thermiques nous a permis de formuler l'hypothèse suivante : le palier isotherme stoppe la croissance du relâchement de la troisième bouffée. Dans l'objectif de le démontrer, nous avons réalisé un traitement thermique en rampe lente (0,2°C/s) sans paliers isothermes jusqu'à 1500°C. Le résultat de cette expérience est présenté en Figure 2.6-1. Nous comparons le relâchement obtenu avec un TT témoin avec rampe lente (0,2°C/s) et un palier isotherme à 1200°C sur un échantillon issu du même crayon.

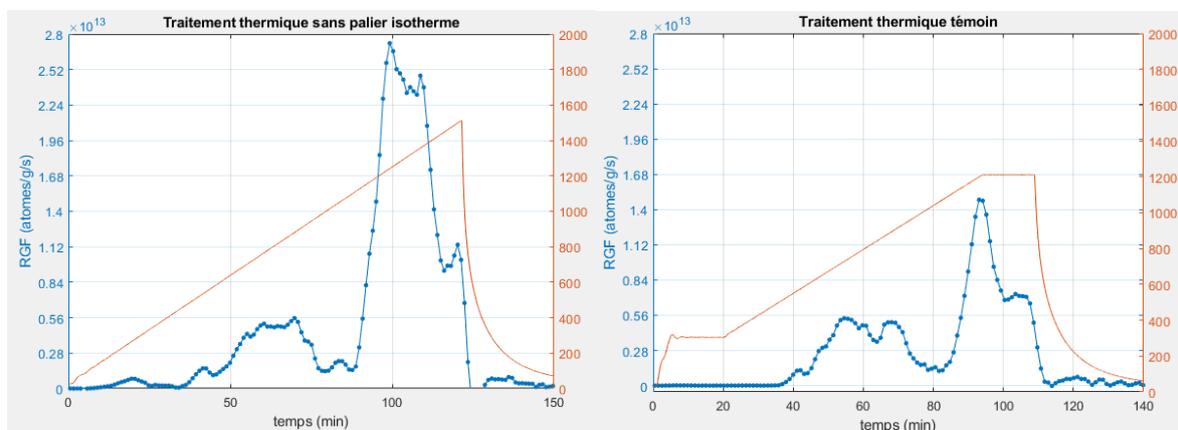


FIGURE 2.6-1 RELACHEMENT GAZEUX DU TT 77 SANS PALIERS ISOTHERMES (A GAUCHE) EN COMPARAISON AVEC LE TT TEMOIN 75 AVEC PALIER ISOTHERME A 1200°C (A DROITE)

Interprétation

Les résultats de cette expérience montrent que le palier isotherme à 1200°C impose en effet un arrêt de l'accélération du relâchement de B3. Dans le traitement thermique témoin, B3 atteint son pic au début du palier de 1200°C. Le traitement thermique sans palier isotherme montre que le gaz continue de relâcher au-delà de 1200°C, son pic est atteint aux alentours de 1300°C avant de commencer à décroître vers 1400°C. La quantité de gaz relâchés en B3 est donc sensible à la température atteinte par la rampe. Sur le TT témoin, B3 correspond à un relâchement de 5,2% du gaz contenu dans l'échantillon alors que dans le cas du TT sans palier avec une température maximum de 1500°C, B3 atteint 13,3 %. On peut donc conclure que ce que nous appelons la troisième bouffée peut correspondre à un relâchement interrompu prématurément à cause du palier isotherme à 1200°C. De surcroît, au-delà de 1200°C d'autres mécanismes de relâchement interviennent, à l'instar de la diffusion thermique qui vient alimenter le réservoir de B3 en gaz intragranulaire (cf 1.2.6), ce qui explique l'augmentation significative de la quantité de gaz relâchés. On observe toutefois une grande dispersion des valeurs du gaz relâché pour B3 dans la plupart des cas des TT

de la base de données. La Figure 2.6-2 qui représente deux TT issus d'un même crayon, avec un historique d'irradiation proche et un même taux de combustion, permet d'illustrer cette dispersion à l'aune du phénomène que nous venons de décrire. Dans les deux cas, B2 relâche la même quantité de gaz, c'est-à-dire 5% de l'inventaire initial. S'agissant de B3, dans le cas du TT a, la croissance de la 3^e bouffée débute un peu avant 1000°C et atteint son pic avant le palier isotherme. B3 relâche ici 19,7%. Pour le TT b, on remarque que la croissance de B3 est plus tardive, vers 1100 °C. Sa croissance s'arrête pendant le palier isotherme de 1200°C, et ne relâche que 6,1%. Entre ces deux traitements thermiques, qui semble constituer deux cas extrêmes, il en existe d'autres, toujours issus du même crayon, où la valeur du relâchement de B3 oscille entre 9 et 15%. Le palier isotherme à 1200°C et la précocité plus ou moins significative du relâchement de B3 permet donc d'expliquer, en partie, la dispersion des valeurs de B3.

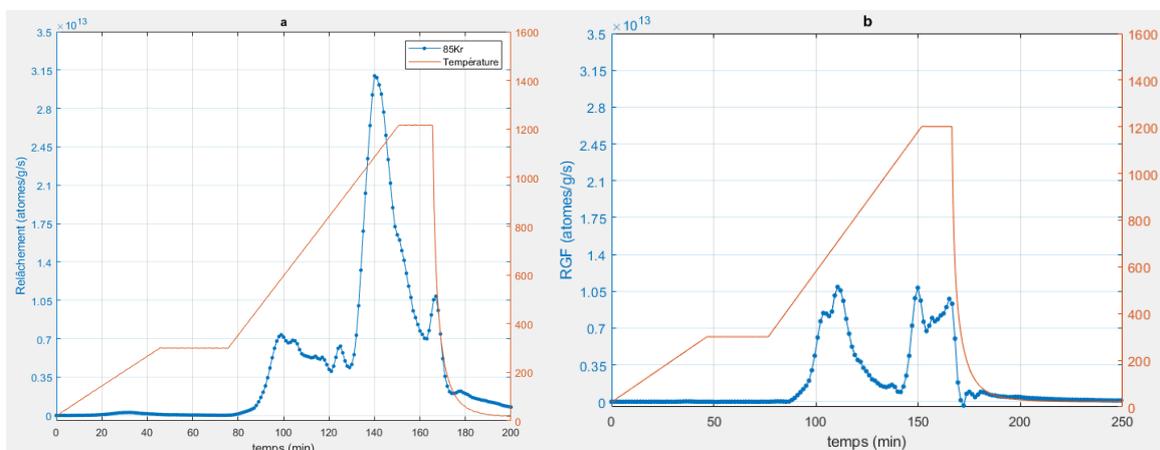


FIGURE 2.6-2 DEUX TT DONT LES ECHANTILLONS SONT ISSUS DU MEME CRAYON, AVEC UNE B3 TRES DIFFERENTE

2.7 FAITS NOTABLES SUR LE PHENOMENE DU RELACHEMENT EN TROIS BOUFFEES

2.7.1 Une bouffée ne relâche pas une seconde fois

Nous cherchons à tester la validité d'une approche mécanique pour expliquer le relâchement par bouffée. Savoir si une bouffée correspond à un réservoir de gaz fini et localisé dans l'échantillon, nous permet d'avancer sur la compréhension des mécanismes de relâchement. Nous avons réalisé dans cet objectif un traitement thermique en double chauffe d'un seul et même échantillon. C'est-à-dire que nous avons fait subir à un même échantillon, deux traitements thermiques à quelques heures d'affilés. L'objectif était de vérifier si les réservoirs de gaz associé à chaque bouffée se reconstituaient ou non entre deux transitoires thermiques ou se vidaient définitivement. Les résultats de ce traitement thermique en double chauffe sont représentés en Figure 2.7-1.

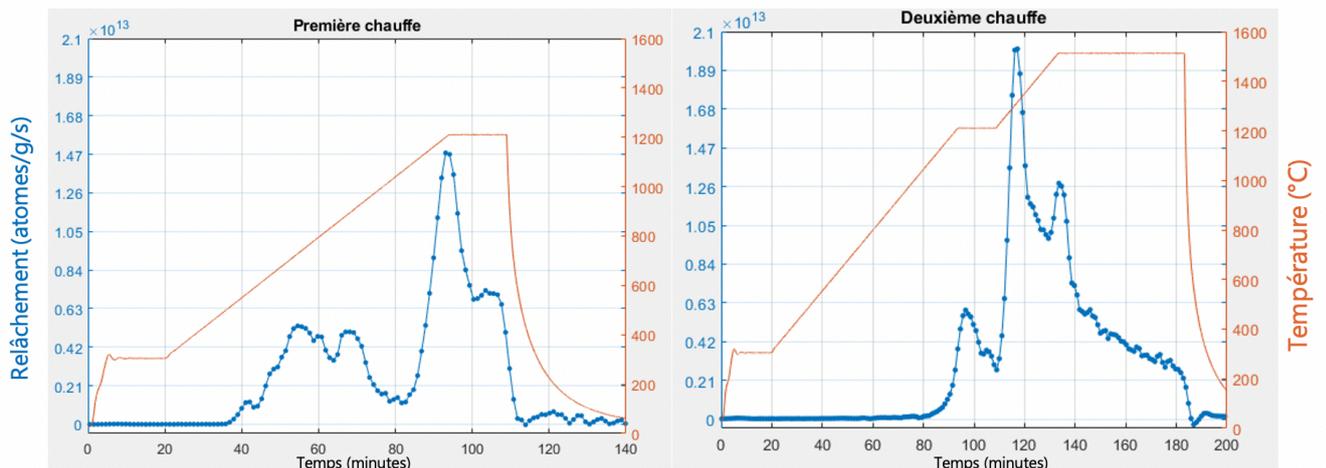


FIGURE 2.7-1 CINETIQUE DE RELACHEMENT DU 85Kr LORS D'UN TT EN DOUBLE CHAUFFE SUR UN SEUL ECHANTILLON. À GAUCHE LA PREMIERE CHAUFFE (0,2°C/s) JUSQU'À 1200°C, A DROITE LA SECONDE CHAUFFE (0,2°C/s) AVEC UN PREMIER PALIER DE 15 MINUTES) 1200°C ET UN SECOND PALIER A 1500°C.

Interprétation

Après une première chauffe, nous n'observons plus le relâchement associé à B2 du premier cycle. Constat similaire pour B3, à l'exception d'un faible relâchement de 1,9% lors du second cycle et qui peut s'expliquer comme étant un reliquat de B3 premier cycle pendant un court palier à 1200°C de 15 minutes. On observe un important relâchement de gaz dès la montée en température au-delà de 1200°C lors de la seconde chauffe. Ces résultats indiquent qu'une fois relâchés, les réservoirs de gaz activés de B2 et B3 ne relâchent pas à nouveau. Les réservoirs de gaz ne sont pas reconstitués entre les deux chaufes séparés d'un délai de 48h. Cette expérience confirme également l'impact du palier de 1200°C sur le relâchement de B3.

2.7.2 Le relâchement à froid

Il est arrivé que des échantillons combustibles soient chargés dans le four MERARG la veille d'un traitement thermique. Dans ces conditions, un relâchement à froid, c'est-à-dire la mesure de ^{85}Kr ayant relâché dans le four avant le début de la montée en température, a été mesuré. Il s'agit de très faible quantité de gaz de l'ordre du pour cent. Un relâchement à froid pourrait impliquer l'existence d'un réservoir de gaz ad hoc et de chemins de relâchement actifs. La Figure 2.7-2 illustre ce phénomène. L'analyse de la cinétique du relâchement à froid n'est ici pas pertinente. Ce relâchement n'a été détecté qu'à la mise en circulation du gaz vecteur et s'est donc accumulé dans le four pendant plusieurs heures avant d'être acheminé jusqu'au détecteur de spectrométrie gamma.

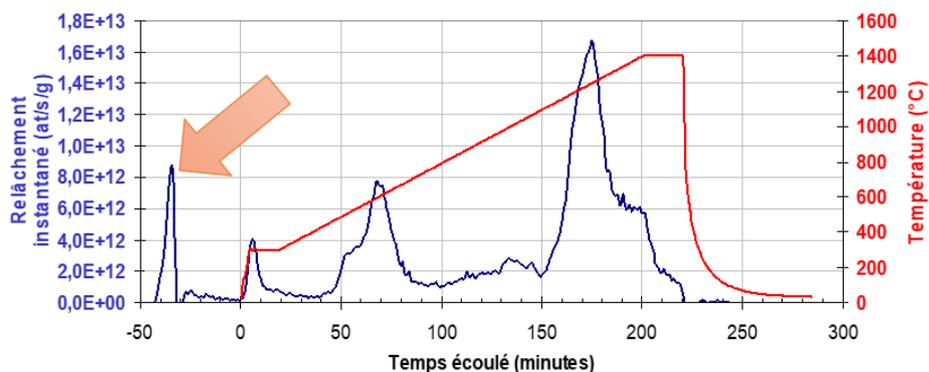


FIGURE 2.7-2 MESURE D'UN RELACHEMENT DE GAZ AVANT LE DEBUT DU TRAITEMENT THERMIQUE (T=-40MIN)

2.7.3 Relier relâchement gazeux et fragmentation du combustible

Des images pré et post-traitement thermiques des échantillons passés dans le four MERARG peuvent être mis en relation avec le relâchement mesuré lors de ces TT. Il faut ici distinguer les échantillons dont la gaine a été entaillée avant le TT des autres dont la gaine est intègre. L'analyse de la base de données ne permet pas d'établir une différence notable dans la cinétique ou les quantités de gaz relâchés entre les échantillons avec gaine entaillé ou intègre. Néanmoins, l'échantillon gaine entaillé après un TT se retrouve fortement fragmenté, voire pulvérisé (fragments sous forme de poudre fine). Ces observations sont cohérentes avec les expériences menées dans l'installation MEXIICO [95]. Les données de fragmentation sur les échantillons gaine intègre sont plus difficiles à interpréter. La fragmentation semble être influencée par la vitesse de rampe, on l'observe préférentiellement sur des échantillons ayant subi des rampes rapides, sur des échantillons à haut taux de combustion et lorsque le protocole implique des températures élevées. Sur des TT dont la température ne dépasse pas les 900°C, l'échantillon semble avoir été moins affecté par la fragmentation. Finalement, on peut observer une forte fragmentation sur un échantillon gaine entaillé, mais qui a peu relâché de gaz et à l'inverse on peut trouver des exemples d'échantillon ayant peu

fragmenté, mais ayant relâché beaucoup de gaz. Il est donc difficile d'établir un lien clair entre relâchement et fragmentation à partir des données de relâchement dans MERARG.

2.7.4 Impact du temps d'entreposage du combustible

Entre sa sortie de réacteur et son traitement thermique dans MERARG, l'échantillon est entreposé pendant une période de plusieurs années, jusqu'à 23 ans. Pour la majorité de la base de données, le temps moyen d'entreposage est d'environ 5 ans. G. Brindelle, dans sa thèse, a défendu l'hypothèse d'une corrélation entre temps d'entreposage et l'augmentation du relâchement pour B2 [102]. Le relâchement de la deuxième bouffée serait alimenté par auto-irradiation α , et augmenterait avec le temps d'entreposage comme illustré à la Figure 2.7-3. Depuis, la base de données des traitements thermiques s'est agrandie et l'amélioration de la méthode de déconvolution analytique nous permet d'affirmer que cette corrélation n'est plus établie comme illustré dans la Figure 2.7-4, notamment par l'ajout de points au-delà des 3500 jours avec un taux de relâchement de moins de 4% qui contredisent la proposition de G. Brindelle.

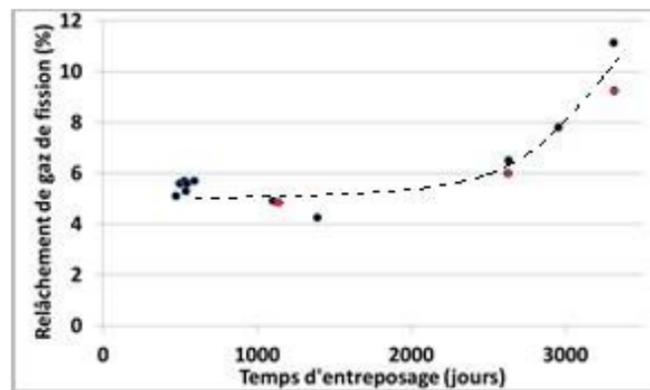


FIGURE 2.7-3 CORRELATIONS ENTRE LE RELACHEMENT DE B2 ET LE TEMPS D'ENTREPOSAGE DANS LES TRAVAUX DE BRINDELLE [102]

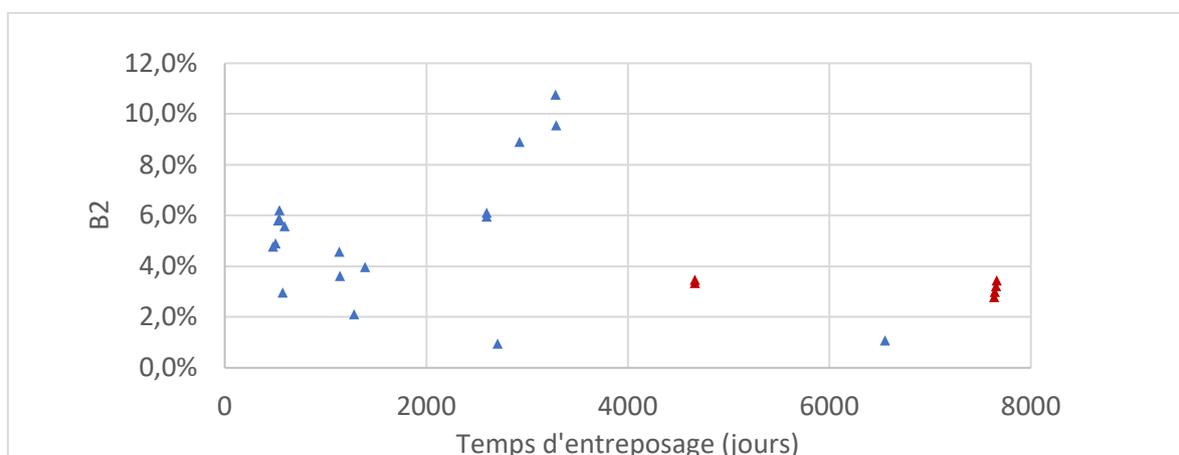


FIGURE 2.7-4 RELATIONS ENTRE LE RELACHEMENT DE B2 ET LE TEMPS D'ENTREPOSAGE ISSU DE L'EXPLOITATION DE LA BASE DE DONNEES DE MERARG : ABSENCE DE CORRELATION.

Les points rouges de la Figure 2.7-4 correspondent à des TT dont les échantillons utilisés sont issus du même crayon et disposent ainsi d'un historique d'irradiation similaire. On notera l'absence de corrélation entre le relâchement de B2 et le temps d'entreposage et cela même pour des échantillons issus du même crayon père.

Par ailleurs, la Figure 2.7-5 indique la relation entre B3 et le temps d'entreposage (en années). La dispersion de B3 limite l'interprétation de cette courbe, mais on remarquera que cette dispersion diminue avec le temps. On peut poser l'hypothèse d'une diminution de B3 en fonction du temps d'entreposage, ce qui permettrait d'expliquer les faibles valeurs de B3 pour les échantillons les plus anciens.

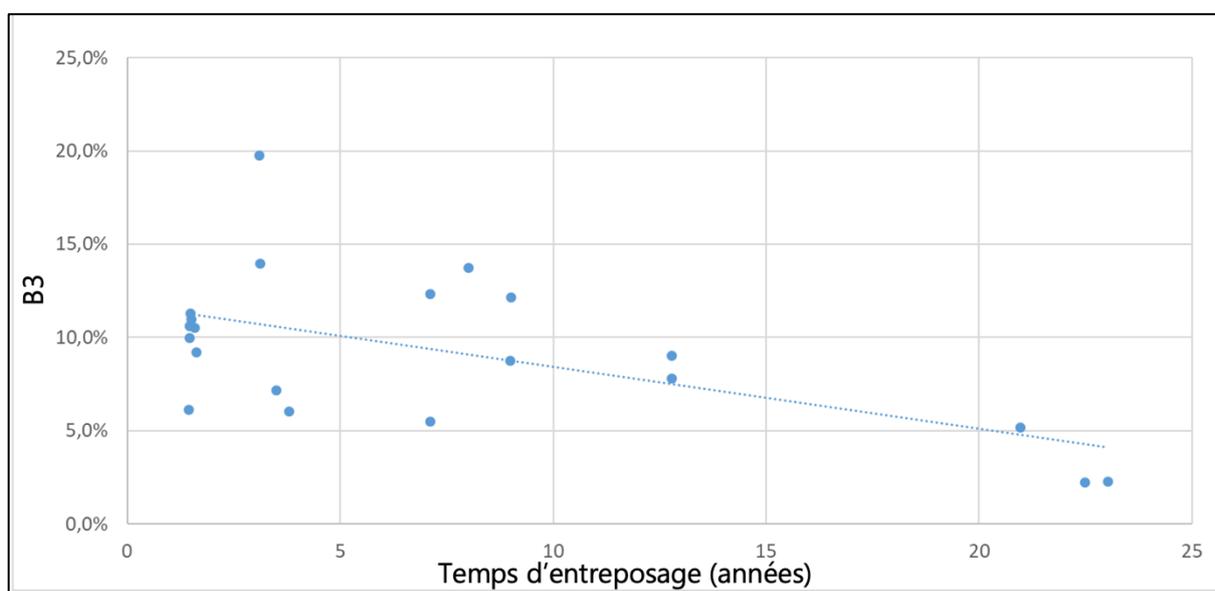


FIGURE 2.7-5 RELATIONS ENTRE LA QUANTITE DE GAZ RELACHES PAR B3 ET LE TEMPS D'ENTREPOSAGE.

2.7.5 Impact d'une atmosphère réductrice en traitement thermique

L'oxydation du combustible nucléaire irradié est un paramètre important qui, comme nous l'avons évoqué avec l'exemple des campagnes ADAGIO, peut participer activement à l'augmentation du relâchement des gaz de fission en transitoire thermique. Dans l'objectif de mieux contrôler les paramètres de l'atmosphère de la boucle MERARG, un système de pompes Gen'Air et Jok'Air est installé en amont et en aval de boucle (chapitre 1). Nous avons voulu tester l'hypothèse de l'impact de l'oxydation sur le relâchement du krypton et plus précisément sur le relâchement de B2, en postulant que l'atmosphère de MERARG pouvait être faiblement oxydante, et pouvait peut être contribuer au relâchement de B2. Dans cette perspective, nous avons réalisé un TT en milieu très réducteur, en utilisant un mélange d'argon et de 2% de dihydrogène en guise de gaz porteur. En suivant notre hypothèse, pour ce TT en

condition très réductrice ($PO_2 = -30$ atm) nous devons observer un changement dans la cinétique et la quantité de gaz relâchés.

Les résultats de ce traitement thermique et du traitement thermique témoin, réalisé sur un échantillon issu du même crayon et dans des conditions d'atmosphère « normale » (c'est-à-dire sans argon hydrogéné) sont illustrés dans la Figure 2.7-6.

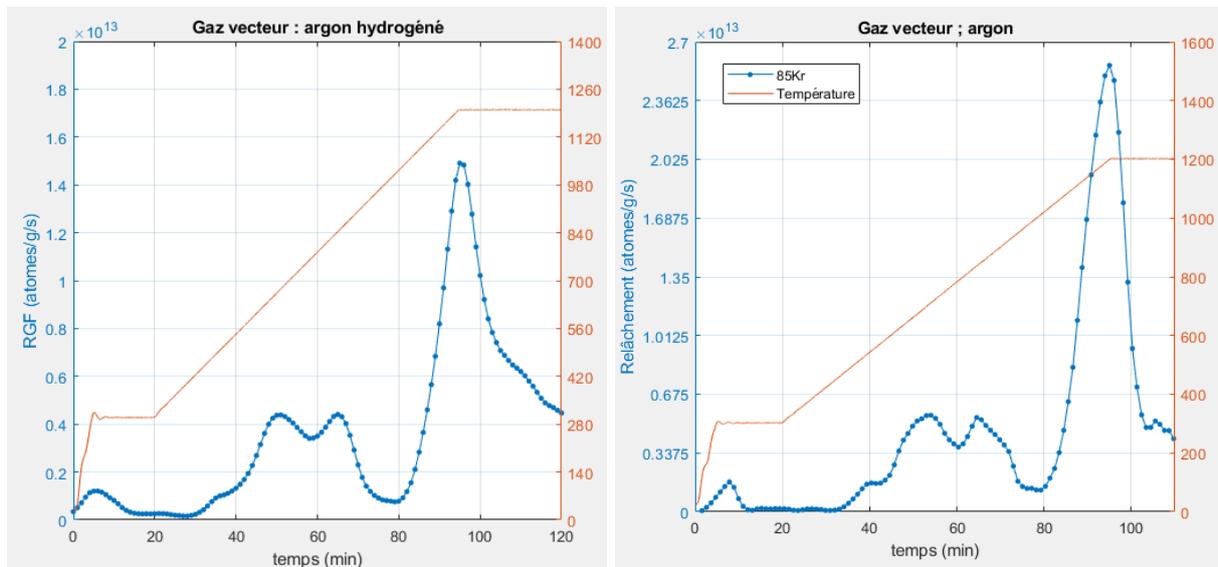


FIGURE 2.7-6 TRAITEMENT THERMIQUE DE COMPREHENSION SUR UO_2 IRRADIE A $72 \text{ GW}_j/t_U$, EN ATMOSPHERE TRES REDUCTRICE (A GAUCHE) ET EN CONDITION CLASSIQUE (ADROITE).

Tant sur la cinétique que sur les quantités de gaz relâché, nous n'observons pas de différences notables entre les TT réalisés sous atmosphère réductrice et sous atmosphère classique.

2.8 CONCLUSION DU CHAPITRE

L'analyse approfondie de la base de données des nombreux traitements thermiques réalisés au cours des 20 dernières années, à la lumière d'une méthode de déconvolution analytique améliorée, nous permet de mieux comprendre la structure du relâchement des gaz en transitoire thermique. Nous retiendrons qu'il existe trois principales bouffées de relâchement : B1, B2 et B3. La valeur moyenne du relâchement des gaz contenus dans un échantillon est comprise entre 0 et 2% pour B1, 0 et 6% pour B2 et 0 et 20% pour B3. B2 et B3 présentent un taux de relâchement d'autant plus important que le taux de combustion augmente. On notera également que la cinétique du relâchement est fortement influencée par la présence de palier isotherme qui arrête l'accélération du relâchement. Lorsqu'un palier isotherme est maintenu plusieurs heures à 1200°C , la décroissance prend une forme caractéristique que l'on nommera « cinétique de vidange ». C'est sur la base de ces faits expérimentaux que nous bâtirons une conceptualisation, puis un modèle d'écoulement des gaz dans le combustible pour

modéliser l'origine de ces bouffées de relâchement et établir la cohérence avec une approche mécanistique.

CHAPITRE 3 : MODELISATION DE L'ÉCOULEMENT DES GAZ DE FISSION DANS LE COMBUSTIBLE EN PALIER ISOTHERME

Le chapitre précédent nous a permis d'appréhender le comportement phénoménologique du relâchement des gaz de fission au cours d'un traitement thermique. Nous voulons mieux comprendre l'origine et les caractéristiques physiques de ce phénomène. Nous avons vu au premier chapitre que les travaux de modélisation s'appuyaient essentiellement sur une approche mécanistique pour expliquer le relâchement : l'augmentation de la température conduirait les bulles de gaz surpressurisé à provoquer la décohérence des joints de grains, puis le relâchement des gaz vers les surfaces libres. Nous voulons confronter cette approche à l'allure des cinétiques de relâchement mesurées. Dans cet objectif, nous présenterons dans un premier temps une conceptualisation des écoulements de gaz à l'intérieur du combustible pendant le traitement thermique en cohérence avec la phénoménologie évoquée. Sur la base de cette conceptualisation, nous proposerons un modèle simplifié d'écoulement des gaz susceptibles de s'ajuster aux données expérimentales de relâchement afin de nous permettre de déterminer des informations quantitatives susceptibles d'éclairer les mécanismes de relâchement. En d'autres termes, nous développerons un modèle qui permet de tester la validité d'une approche "coarse grains" (gros grains) pour le relâchement des gaz de fission par bouffées successive.

3.1 CONCEPTUALISATION DES ÉCOULEMENTS DE GAZ DE FISSION DANS LE COMBUSTIBLE EN TRAITEMENT THERMIQUE

Nous avons vu dans le chapitre 1 que la circulation des gaz dans le combustible peut avoir pour origine plusieurs mécanismes impliquant plusieurs échelles ; diffusion intragranulaire, diffusion intergranulaire, interconnexion des bulles de gaz, mobilité des gaz dans les porosités ou dans les fissures du combustible, etc. Nous souhaitons développer un modèle pour décrire la mobilité du gaz dans la macroporosité du combustible, c'est-à-dire son écoulement dans la porosité connectée et les fissures d'un échantillon combustible irradié pendant un traitement thermique. Dans cet objectif, nous rappellerons quelques concepts clefs et définitions nécessaires pour les écoulements dans le combustible avant d'en définir des équations mathématiques.

Porosité [103]: La porosité recoupe l'ensemble des espaces poreux, ouvert ou fermé, qui compose un solide. On la définit classiquement comme un ratio entre le volume poreux et le volume total d'un solide considéré :

$$\omega = \frac{\text{Volume poreux}}{\text{Volume total du materiau}}$$

En ce qui concerne nos travaux, nous nous intéressons exclusivement à la porosité ayant établi une interconnexion (porosité dite ouverte ou cinématique) c'est-à-dire l'espace connecté pouvant accueillir les gaz et leur circulation. Dans le cas du combustible nucléaire irradié pendant un transitoire thermique, cette porosité connectée n'est pas statique. Elle augmente avec notamment l'interconnexion des réservoirs de gaz.

Perméabilité [103]: Le combustible nucléaire est assimilé à un milieu poreux. L'écoulement d'un gaz à travers un milieu poreux peut être décrit par la loi de Darcy. Cette loi fait intervenir le coefficient de perméabilité intrinsèque, K [m^2], qui traduit la configuration géométrique de la porosité vis-à-vis de l'écoulement. La connaissance de la géométrie complète de la porosité connectée du combustible nucléaire irradié est difficile à appréhender d'autant qu'elle varie pendant un transitoire thermique. Néanmoins, on peut formuler l'hypothèse que la perméabilité est constante durant un palier isotherme. C'est sur cette hypothèse que nous souhaitons notamment baser notre modèle. Cette loi a déjà été utilisée pour décrire le transport des gaz à travers la porosité connectée dans des pastilles de combustible des surgénérateurs [104] ou lors de mesures de perméabilité des crayons combustibles REP lors d'interprétation de mesures de perçage [103], ou encore dans travaux visant à intégrer un coefficient de perméabilité dans le code SCANAIR [105].

3.1.1 Domaine de validité de la loi de Darcy

Nous voulons démontrer ici, que l'utilisation de la loi de Darcy est valide pour notre problématique. Elle s'applique en régime laminaire, c'est-à-dire lorsque le nombre de Reynolds $R_e \leq 10$. Pour être laminaire, la limitation suivante doit donc être respectée [104]:

$$R_e = \frac{\rho u \sqrt{K}}{\mu} \leq 10. \quad (5.1)$$

Avec ρ la masse volumique, u la vitesse du débit, K la perméabilité et μ la viscosité dynamique du gaz. La vitesse de Darcy est donnée par la formule suivante [106]:

$$u = - \frac{K}{\mu} \cdot \text{grad}(p) \quad (5.2)$$

En posant $\text{grad}(p) = -\frac{\Delta p}{L}$, où L est l'épaisseur du milieu poreux, puis en approximant $\Delta P \sim P$:

$$\frac{K \sqrt{K} \cdot M \cdot P^2}{L \cdot \mu^2 \cdot R \cdot T} \leq 10. \quad (5.3)$$

Avec R la constante des gaz parfaits, P la pression considérée, M la masse molaire du ^{85}Kr ($=0,085 \text{ Kg/mol}$) et T la température considérée.

Nous connaissons la viscosité dynamique du krypton : $\mu = 2,5 \cdot 10^{-5} \sqrt{\frac{T}{300}} \text{ (Pa} \cdot \text{s)}$

Ainsi :

$$\left(\frac{P}{T}\right)^2 \leq 2 \cdot 10^{-9} \frac{L}{K\sqrt{K}} \quad (5.4)$$

En exprimant P en bar, on obtient :

$$\frac{P}{T} \leq 4,5 \sqrt{\frac{L}{K\sqrt{K}}} \quad (5.5)$$

Prenons pour T la valeur minimale, soit 300 K, et pour L la distance moyenne suivant le rayon d'un point de la pastille à sa surface. On a donc, R_p étant le rayon de la pastille et x la distance à la surface :

$$L = \frac{\int_0^{R_p} x (R_p - x) dx}{\int_0^{R_p} (R_p - x) dx} \frac{R_p}{3} \quad (5.6)$$

Le diamètre d'une pastille étant de 8,36 mm (chapitre 1), $L = 1,4 \cdot 10^{-3} \text{ m}$

$$P \text{ (bar)} \leq \frac{29}{\frac{3}{K^4(m^2)}} \quad (5.7)$$

Nous ne disposons que de très peu de valeurs expérimentales de K ; nous prendrons les valeurs déterminées par Étienne Castelier [103] sur des crayons combustibles UO_2 , à savoir $K \approx 10^{-14} \text{ m}^2$ pour un taux de combustion de $50 \text{ GW}_j/\text{t}_U$.

Ainsi, pour que $R_e \leq 10$:

$$P \text{ (bar)} \leq 9 \cdot 10^{11} \text{ bar}. \quad (5.8)$$

Cette condition est évidemment toujours vérifiée.

Effet de la densité du gaz

Toutes les relations ci-dessus ont été établies pour des gaz parfaits, c'est-à-dire pour lesquels le covolume des atomes est négligeable. Pour des gaz denses il faut tenir compte de ce volume, ce qui conduit à utiliser l'équation de Van der Waals, et en outre il faut considérer les chocs ternaires dans le calcul de l'expression de la viscosité. Cet effet ne devient important qu'à partir de plusieurs centaines de bar. Ainsi pour l'azote (dont la viscosité est proche de celle du krypton), quand on passe de la pression ambiante à 300 bars (ordre de grandeur des pressions étudiées ici), la viscosité dynamique est multipliée par un facteur 1,4 (voir [107] p. 309), ce qui n'est pas très élevé en comparaison des incertitudes existant par ailleurs sur les caractéristiques du

combustible (perméabilité, géométrie des chemins de relâchement). Nous ne tiendrons donc pas compte de cet effet et utiliserons la loi des gaz parfaits comme approximation.

3.1.2 Séquençage du relâchement d'une bouffée

Nous souhaitons décrire le relâchement d'une bouffée de manière cohérent avec un mécanisme de décohésion des joints de grains. Ainsi, on associe à une bouffée de relâchement un réservoir de gaz qui lui est propre, à l'intérieur de l'échantillon, et qui se libère sous l'effet d'une température donnée. Cette libération implique donc plusieurs étapes illustrer à la Figure 3.1-1 :

1. Augmentation de la pression des bulles de gaz en fonction de la température (moteur du relâchement) ;
2. Interconnexion des bulles de gaz qui vont constituer un réservoir de gaz disponible, sous l'effet de la rampe de température (alimentation) ;
3. Ouverture des chemins de relâchement des gaz ;
4. Vidange du réservoir de gaz jusqu'à la mise à l'équilibre entre pression interne et pertes de charge dans le dernier chemin ouvert.

En nous appuyant sur les observations faites sur la cinétique de relâchement caractéristique de la troisième bouffée pendant un palier isotherme maintenu à 1200°C, évoqués au chapitre 3, nous faisons l'hypothèse que pendant ce palier isotherme que la topologie des chemins de relâchement n'évolue pas. Ainsi, la pression interne du réservoir de gaz est le seul paramètre moteur du relâchement pendant la vidange, via la sélection des chemins que le gaz peut emprunter.

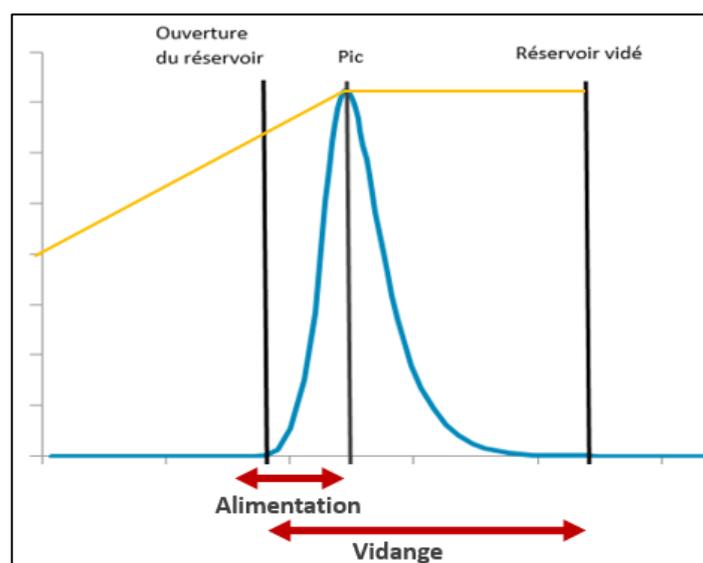


FIGURE 3.1-1 SCHEMA DE LA SUPERPOSITION DES PHASES D'ALIMENTATION ET DE VIDANGE QUI CONSTITUE UNE BOUFFEE

Formulé ainsi, le relâchement d'une bouffée correspond à la superposition de deux phénomènes :

- Une phase d'alimentation : Le réservoir de gaz disponible se constitue en vue de son relâchement (interconnexion des bulles intergranulaire et ouverture des joints de grains)
- Une phase de vidange : Le contenu du réservoir s'écoule en dehors de l'échantillon lorsque la pression interne est supérieure aux pertes de charge.

La rampe de température est le moteur de la phase d'alimentation, en palier isotherme il n'y a donc plus d'alimentation. Ainsi le relâchement vidange pendant le palier isotherme va dès lors dépendre de trois paramètres : La quantité de gaz dans le réservoir, la pression du réservoir et la perméabilité du chemin emprunté.

L'analyse de la cinétique du phénomène d'alimentation est complexe :

- La phase d'alimentation est relativement rapide, si bien que nous la mesurons avec peu de points expérimentaux.
- En tenant compte de l'incertitude liée à la mesure et à la déconvolution des données mesurées, une trop grande variété de fonctions peut décrire cette cinétique.

En d'autres termes, il est difficile d'exploiter les mesures de la cinétique d'alimentation. Nous avons vu que la phase de vidange quant à elle, adoptait un régime d'écoulement décroissant en palier isotherme avec une forme caractéristique. Son relâchement est relativement lent et les données des mesures sont suffisamment précises (de nombreux points expérimentaux sur plusieurs heures), qu'elle sied à une analyse cinétique plus poussée. L'approche gros grain présenté dans cette section ne permet pas de décrire les mécanismes élémentaires, mais permet de paramétrer les observations avec un modèle simple, mais robuste pour la partie vidange du relâchement. Nous consacrerons donc la modélisation sur la description cinétique de phase de vidange.

3.1.3 Simplification topologique du milieu d'écoulement

Pour illustrer la topologie du problème, nous nous appuyerons sur l'exemple de la troisième bouffée de relâchement. Nous avons vu dans la partie 1.5.1 que le gaz relâché lors de B3 provenait essentiellement de la zone RIM. Ainsi, l'image MEB en Figure 3.1-2 présente la zone RIM en post-TT, avec un RIM fracturé sous l'effet du transitoire thermique. C'est au sein de ce RIM fracturé que les gaz de B3 se sont écoulés.

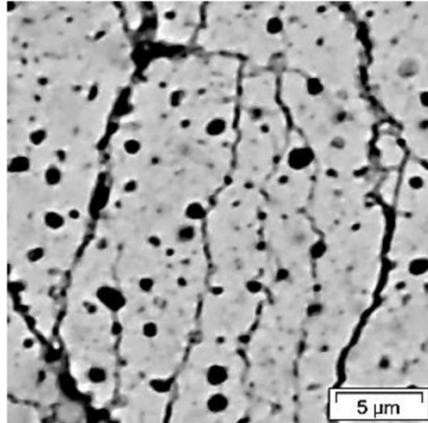


FIGURE 3.1-2 IMAGE MEB APRES TRAITEMENT THERMIQUE DE LA ZONE RIM D'UN ECHANTILLON UO_2 IRRADIE [75].

Il est difficile de déterminer avec précision un nombre de chemins à l'échelle d'un échantillon, la littérature scientifique n'en fait pas mention. Des physiciens se sont intéressés à la topologie d'un milieu poreux traversé par un fluide sous pression [110] (loi de Darcy). Dans leurs travaux ils font état qu'une configuration topologique à un canal unique ou une topologie avec un grand nombre de canaux, illustré en Figure 3.1-3, sont équivalentes et correspondent à la même classe d'universalité. Sur la base de ce résultat, nous proposerons un modèle qui s'appuie sur une configuration topologique simplifiée, c'est-à-dire assimilée à un simple canal reliant un réservoir de gaz surpressurisé et la surface libre d'un échantillon combustible.

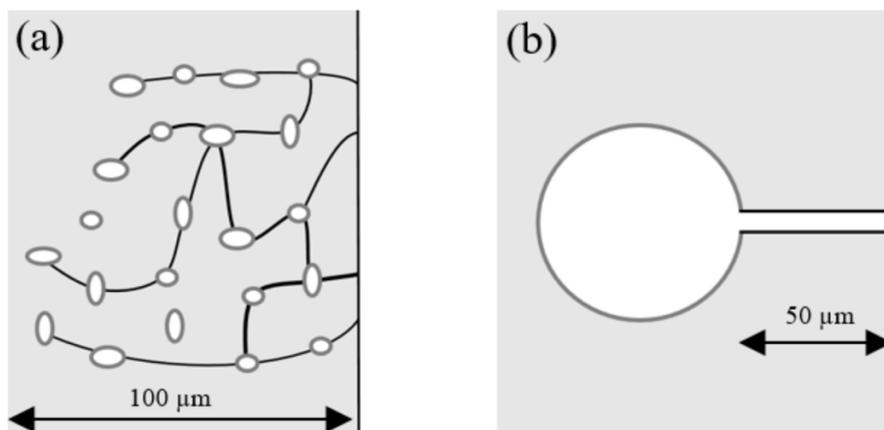


FIGURE 3.1-3 SCHEMA DES INTERCONNEXIONS ENTRE LES RESERVOIRS DE GAZ DE FISSION ET LA SURFACE LIBRE DE LA PASTILLE : LA CONFIGURATION REELLE, TORTUEUSE AVEC DE NOMBREUX CANAUX (A) ET LA TOPOLOGIE SIMPLIFIEE DU PROBLEME A UN CANAL UNIQUE (B).

3.2 ÉQUATION D'ÉCOULEMENT

À partir du bilan de masse, de l'équation de Darcy et de la loi des gaz parfaits, nous pouvons exprimer l'évolution de la pression interne du réservoir de gaz disponible, pendant la phase de vidange en condition isotherme.

- **Bilan de masse**

Le bilan de masse exprime la variation de masse volumique du gaz ρ [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$], en fonction de sa vitesse u [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]. Il dépend d'un premier paramètre du milieu poreux : sa porosité ω [sans unité].

$$\frac{\partial}{\partial t}(\omega \rho) + \text{div}(\rho u) = 0 \quad (6)$$

- **Loi de Darcy**

La loi de Darcy exprime le flux d'un gaz Q [$\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$], produit de la vitesse u [$\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$] des gaz et d'une aire S [m^2], en fonction des gradients de pression p [Pa]. Il dépend du tenseur de perméabilité K [m^2], qui caractérise le milieu poreux du point de vue de l'écoulement, et de la viscosité dynamique μ [$\text{kg} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$] du gaz.

$$Q = u \cdot S = - \frac{\bar{K}}{\mu} \cdot S \cdot \text{grad}(p) \quad (7)$$

- **Loi des Gaz parfaits**

Expression de la masse volumique, en fonction de la constante des gaz parfaits $R=8,31 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, M [kg/mol] la masse molaire du gaz, et T [K] la température.

$$\rho = p \frac{M}{RT} \quad (8)$$

En injectant (7) et (8) dans (6) nous obtenons :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\omega p \frac{M}{RT} \right) = \text{div} \left(p \frac{M}{RT} \cdot - \frac{\bar{K}}{\mu} \cdot \text{grad}(p) \right) \quad (9)$$

Dans le cas d'un écoulement en condition isotherme, la température est constante. On peut donc simplifier les paramètres constants de chaque côté de l'expression précédente. On peut alors simplifier ainsi l'équation :

$$\omega \frac{\partial p}{\partial t} = - \frac{K}{\mu} \text{div}(p \cdot \text{grad}(p)) \quad (9.1)$$

3.2.1 Schéma et conditions aux limites de Dirichlet

Conditions initiales et conditions aux limites :

Pour $x=0$: $P = P_i$

Pour $x=L$: $P = P_e$

À $t=0$ $P_i = P_0$

À $t=+\infty$ P_i tend vers P_e

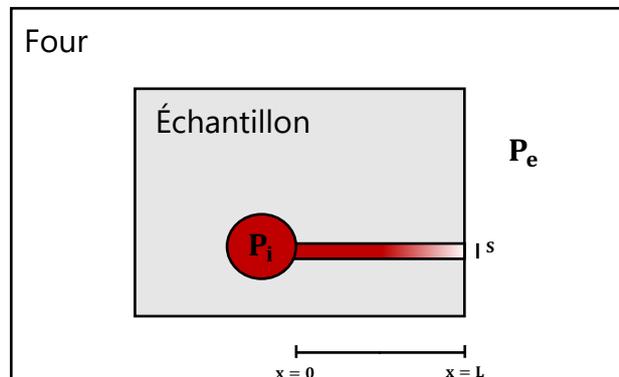


FIGURE 3.2-1 SCHEMA DE L'ÉCOULEMENT SIMPLIFIÉ D'UNE BOUFFÉE

La Figure 3.2-1 présente un schéma de l'écoulement simplifié des gaz lors d'une bouffée de relâchement sur une seule dimension. On se situe à l'échelle d'un échantillon combustible de la taille d'une pastille. L'ensemble des canaux empruntés par le gaz sont simplifiés en un seul canal de longueur L et de section S . Le réservoir de gaz est représenté par une sphère rouge dans l'échantillon d'un volume V et une pression interne P_i . La pression à l'extérieur de l'échantillon, dans le four, est notée P_e . Avant $t=0$ (avant le palier isotherme), le gaz a commencé à s'écouler dans le canal. À $t=0$, nous entrons en phase de vidange : on considère que la géométrie du chemin reliant le réservoir de gaz à l'extérieur de l'échantillon n'évolue plus. Au début du palier isotherme, la perméabilité dans le canal est donc constante et le gradient de pression s'établit entre P_i , qui varie en fonction du temps et P_e , la pression dans le four constant. Le volume du four n'est ici pas considéré, ce dernier étant balayé par un gaz vecteur pendant toute la durée du TT. La pression à l'intérieur du réservoir de gaz, P_i , va dès lors diminuer jusqu'à atteindre l'équilibre.

3.2.2 application de l'équation d'écoulement au domaine géométrique défini

On applique l'équation 9.1 sur le volume d'un réservoir et les conditions limites considérées :

$$\int_V \omega \frac{\partial p}{\partial t} dV = \int_V -\frac{K}{\mu} \operatorname{div}(p \cdot \operatorname{grad}(p)) dV \quad (9.2)$$

En utilisant le théorème de Green-Ostrogradski, on peut récrire l'équation précédente ainsi :

$$\int_V \omega \frac{\partial p}{\partial t} dV = -\frac{K}{\mu} \oint_{\partial V} p \cdot \operatorname{grad}(p) dS \quad (9.3)$$

Après intégration nous obtenons :

$$V_i \frac{\partial P_i}{\partial t} = -\frac{K}{\mu} \times S \times \frac{(P_i + P_e)}{2} \times \frac{(P_i - P_e)}{L} \quad (9.4)$$

Pour finalement aboutir sur l'équation différentielle d'écoulement :

$$V_i \frac{\partial P_i}{\partial t} = -\frac{K.S}{2 \cdot \mu \cdot L} \times (P_i^2 - P_e^2) \quad (9.5)$$

Avec :

V_i : le volume du gaz à l'intérieur de l'échantillon

P_i : la pression à l'intérieur du réservoir de gaz

P_e : la pression dans le four, ici constant et égale à la pression atmosphérique

K : la perméabilité du chemin

S : la section du chemin de relâchement

L : la longueur du chemin

μ : la viscosité dynamique du gaz

Analyse dimensionnelle :

$$V_i \frac{\partial P_i}{\partial t} = -\frac{K.S}{2 \cdot \mu \cdot L} \times (P_i^2 - P_e^2) \leftrightarrow \left[\frac{m^3 \times Pa}{s} \right] = \frac{[m^2 \times m^2 \times Pa^2]}{[Pa \times s \times m]}$$

3.2.3 Étapes d'intégrations

1. On pose : $\frac{\partial P_i}{\partial t} = A \cdot P_i^2 - B$ avec $A = -\frac{K.S}{2 \cdot \mu \cdot L \cdot V_i}$ et $B = -\frac{K.S.P_e^2}{2 \cdot \mu \cdot L \cdot V_i} = A \times P_e^2$

2. $\frac{\partial P_i}{A \cdot P_i^2 - B} = \partial t \rightarrow \partial t = \frac{\partial P_i}{A \left[\left(P_i + \sqrt{\frac{B}{A}} \right) \left(P_i - \sqrt{\frac{B}{A}} \right) \right]} = \frac{\partial P_i}{A} \times \frac{1}{-2\sqrt{\frac{B}{A}}} \left(\frac{1}{P_i + \sqrt{\frac{B}{A}}} - \frac{1}{P_i - \sqrt{\frac{B}{A}}} \right)$

3. Intégration :

$$t = -\frac{1}{2 \cdot \sqrt{A} \cdot \sqrt{B}} \left[\ln \left(P_i \sqrt{\frac{A}{B}} + 1 \right) - \ln \left(P_i \sqrt{\frac{A}{B}} - 1 \right) \right]$$

$$-2 \cdot \sqrt{A} \cdot \sqrt{B} \cdot t = \ln \left(\frac{P_i \sqrt{\frac{A}{B}} + 1}{P_i \sqrt{\frac{A}{B}} - 1} \right) \rightarrow C e^{-2 \cdot \sqrt{A} \cdot \sqrt{B} \cdot t} = \frac{P_i \sqrt{\frac{A}{B}} + 1}{P_i \sqrt{\frac{A}{B}} - 1}$$

4. Comme $\sqrt{A} \cdot \sqrt{B} = A \cdot P_e$ et $\sqrt{\frac{A}{B}} = \frac{1}{P_e}$

$$\rightarrow C e^{-t/\tau} = \frac{\frac{P_i}{P_e} + 1}{\frac{P_i}{P_e} - 1} = 1 + \frac{2}{\frac{P_i}{P_e} - 1} \text{ avec } \tau = \frac{1}{2 \cdot A \cdot P_e} = -\frac{\mu \cdot L \cdot V_i}{P_e \cdot K \cdot S}$$

5. A t=0 : $C = \frac{\frac{P_0}{P_e} + 1}{\frac{P_0}{P_e} - 1} = 1 + \frac{2}{\frac{P_0}{P_e} - 1}$ avec P_0 : pression initiale dans le réservoir

En intégrant l'équation 9.5 nous obtenons l'expression temporelle de P_i :

$$P_i(t) = \frac{2 \cdot P_e}{C e^{-\frac{t}{\tau}} - 1} + P_e \quad (10)$$

Avec :

La constante $C = 1 + \frac{2}{\frac{P_0}{P_e} - 1}$ (10.1) avec P_0 : pression dans le réservoir à t=0.

Et un temps caractéristique d'écoulements $\tau = -\frac{\mu \cdot L \cdot V_i}{P_e \cdot K \cdot S}$ (10.2)

À partir de l'expression temporelle de P_i , nous pouvons déterminer l'expression du flux de sortie des gaz avec la loi de Darcy, en injectant l'équation 10 dans l'expression 9 :

$$Q = \frac{K.S}{2 \cdot \mu \cdot L} \times \left(\left(\frac{2 \cdot P_e}{C e^{-\frac{t}{\tau}} - 1} + P_e \right)^2 - P_e^2 \right) \quad (11)$$

3.2.4 Simplification de l'expression du temps caractéristique d'écoulements

Dans des configurations simples, il est possible de calculer la perméabilité avec les formules de Poiseuille :

- Pour un tube de rayon R : $K = \frac{R^2}{8}$
- Entre deux plaques écartées de d : $K = \frac{d^2}{12}$

S étant la surface traversée par le flux, on peut l'écrire ainsi : $S = \pi R^2$
Ainsi, on peut exprimer S en fonction de K et simplifier l'expression de τ :

$$S = 8 \pi K \quad \text{et donc} \quad \tau = -\frac{\mu \cdot L \cdot V_i}{P_e \cdot 8 \pi K^2} \quad (10.3)$$

3.2.5 Relier le flux de gaz aux données expérimentales

Dans MERARG nous mesurons une cinétique qui s'exprime en nombre d'atomes de ^{85}Kr ramenée à la masse de l'échantillon, par seconde. Pour simplifier et adapter l'équation 11 à nos données de relâchement, nous utiliserons l'équation suivante pour modéliser le relâchement de gaz de fission de ^{85}Kr :

$$RGF_{Kr85} = \lambda \times \left(\left(\frac{2 \cdot P_e}{C \cdot \exp\left(\frac{-t}{\tau}\right) - 1} + P_e \right)^2 - P_e^2 \right) \quad (12)$$

Avec λ déterminé à partir de l'analyse dimensionnelle de l'équation :

$$\lambda = \frac{K \cdot S}{2 \cdot \mu \cdot L} \times \frac{M \cdot M_a}{N_a \cdot \rho}$$

Avec :

M : Masse de l'échantillon

M_a : Masse molaire du ^{85}Kr

N_a : Nombre d'Avogadro

ρ : Masse volumique du ^{85}Kr

3.3 AJUSTEMENT DU JEU DE DONNEE

3.3.1 Ajustement de la dérivée logarithmique du relâchement

Finalement, l'ajustement de l'équation 12 porte sur le jeu des trois paramètres suivants : λ, τ, C

Ces trois paramètres sont fortement dépendants, ce qui donne des résultats d'ajustement très sensibles à de faibles variations. Pour pallier cette sensibilité et améliorer la robustesse de notre ajustement, nous utiliserons la méthode de la dérivée logarithmique.

$$RGF_{Kr85} = \lambda \times \left(\left(\frac{2 \cdot P_e}{C \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - 1} + P_e \right)^2 - P_e^2 \right) \quad (13)$$

$$Dlog(RGF_{Kr85}) = \frac{(RGF_{Kr85})'}{RGF_{Kr85}} = \frac{2 \cdot \frac{\partial}{\partial t} P_i \cdot P_i}{P_i^2 - P_e^2} \quad (14)$$

$$Dlog(RGF_{Kr85}) = \frac{4 \cdot C \cdot P_e \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)}{\tau \cdot \left(C \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - 1\right)^2} \times \left(\frac{2 \cdot P_e}{C \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - 1} + P_e \right) \quad (15)$$

L'avantage premier d'avoir recours à la dérivée logarithmique dans la réalisation de notre ajustement va être de pouvoir réduire le nombre de paramètres à ajuster. Ainsi l'ajustement portera uniquement sur deux paramètres : τ et C

De plus, comme nous l'avons vu à la section 2.6, la quantité de gaz relâchés par une bouffée interrompue par un palier isotherme n'est pas un paramètre robuste : L'ajustement sur la dérivée logarithmique est donc un argument valide.

3.3.2 Détermination de l'intervalle d'ajustement et qualité d'ajustement

Nous voulons ajuster le modèle sur la phase de vidange du relâchement en palier isotherme. Nous l'avons vu, cette phase débute pendant le palier isotherme. Cependant, un phénomène se manifeste au tout début du palier isotherme, ce qui vient biaiser l'ajustement du modèle. Afin d'ajuster la partie de la courbe de vidange isotherme qui soit cohérente avec nos hypothèses, nous utiliserons l'indicateur de la racine de l'erreur quadratique moyenne (REQM), qui correspond à l'écart type entre les données expérimentales et les valeurs de notre modèle.

La REQM des valeurs prédites du modèle \hat{y}_t pour les instants t de la variable dépendante y_t issus des données expérimentales, est calculée pour T nombre de points comme la racine carrée de la moyenne des carrés des écarts :

$$REQM = \sqrt{\frac{\sum_{t=1}^T (\hat{y}_t - y_t)^2}{T}}$$

L'intervalle d'ajustement de la courbe correspondra donc à l'intervalle au sein de la courbe de vidange isotherme dont la REQM est le plus faible. De cette manière nous sélectionnerons l'intervalle de donnée le plus large possible, pendant la vidange, tout en évitant d'y intégrer le phénomène transitoire.

Une fois la dérivée logarithmique ajustée avec l'équation 15 sur l'intervalle défini, nous obtenons des valeurs stabilisées pour τ et C . Il nous suffit de reprendre ces valeurs et de procéder à l'ajustement des données expérimentales par l'équation 13 pour déterminer K .

Nous utiliserons le coefficient de variation, CV , pour mesurer la qualité de l'ajustement. CV est défini comme la REQM normalisée : le quotient entre le REQM et la valeur moyenne des données sur l'intervalle ajusté, μ .

$$CV = \frac{REQM}{\mu}$$

Le coefficient permet de juger de la dispersion des valeurs du modèle autour des données expérimentales. On estime communément qu'un CV inférieur à 15% indique une bonne qualité d'ajustement [108].

Le CV nous permettra également de définir des intervalles de confiance des jeux données générés par l'ajustement de courbes entre le modèle et les données expérimentales de relâchement.

3.4 CONCLUSION DU CHAPITRE

À partir de la phénoménologie du relâchement des gaz de fission par bouffée, nous avons proposé un modèle d'écoulement vidange. Ce modèle s'applique à l'analyse du relâchement lors de TT dans MERARG et plus précisément sur la décroissance du relâchement mesuré pendant les phases de palier isotherme. À partir d'hypothèses simples, nous pouvons modéliser cette décroissance isotherme baptisée vidange. Les hypothèses du modèle reposent sur une approche mécanistique du relâchement, cohérente avec un mécanisme de décohésion des joints de grains. La cinétique de l'écoulement vidange est décrite par différents paramètres physiques, à savoir la quantité de gaz relâchés, le volume et la pression du réservoir de gaz disponibles ou encore le facteur perméabilité des chemins de relâchement. En confrontant le modèle aux données expérimentales, nous pouvons évaluer l'ordre de grandeur de ces paramètres et ainsi tester la validité du modèle et de ses hypothèses. Ce sera l'objet du chapitre suivant.

CHAPITRE 4 : ÉTUDE ET INTERPRÉTATIONS DU COMPORTEMENT CINÉTIQUE DU RELÂCHEMENT DES GAZ DE FISSION PAR BOUFFÉE

L'objectif de ce chapitre est de confronter le modèle d'écoulement vidange présentée dans le chapitre précédent avec les données expérimentales de relâchement. Nous adopterons une analyse pour chacune des bouffées afin, d'une part, de vérifier si leur comportement cinétique se rapproche des hypothèses du modèle d'écoulement vidange et, d'autre part, d'identifier quelles informations physiques nous pouvons en déduire. Pour cela, il est nécessaire de ne retenir que les TT où un palier isotherme a été maintenu suffisamment longtemps pour permettre à une bouffée de relâchement d'adopter une cinétique de vidange, c'est-à-dire une décroissance isotherme du relâchement, telle que décrite au chapitre 3. Nous analyserons les bouffées d'échantillons combustibles irradiés exclusivement composés d' UO_2 (non dopée) pour faciliter l'interprétation.

Pour B3, deux TT répondent à ces critères : les TT 23 et 73 de la base de données présentée dans le tableau 3.1 du chapitre 3. Le TT 73 a d'ailleurs été réalisé spécifiquement dans le cadre de cette thèse. Pour B1, la plupart des TT ont été réalisés avec un court palier isotherme à 300°C ce qui facilite l'apparition d'un écoulement vidange. Nous retiendrons les TT 34, 35 et 78 qui sont les plus exploitables à cet égard. Enfin, la base de données ne disposait pas de TT avec un palier isotherme suffisamment long pour provoquer un écoulement vidange lors du relâchement correspondant à B2. Nous avons donc réalisé un TT spécifiquement dédié pendant la thèse : le TT 78. Le Tableau 3.4-0 synthétise les informations de ces différents traitements thermiques, la bouffée étudiée, leur taux de combustion, et la proportion de 85Kr relâchés pour chaque bouffée.

TABLEAU 3.4-0 : RECAPITULATIF DES TT EXPLOITEES AVEC LE MODELE POUR LES TROIS BOUFFEES.

REF TT	Bouffée étudiée	BU (GW_j/t_U)	Température max	B1%	B2%	B3%	RGF%
23	B3	63	1200	0,3%	4,9%	14,0%	19,1%
79	B3	72	1200	0,3%	3,0%	9,9%	13,2%
34	B1	69	1200	1,0%	6,0%	5,5%	12,5%
35	B1	69	1200	1,1%	6,1%	12,3%	19,5%
78	B1 et B2	72	850	0,4%	2,8%	/	3,2%

Nous rappelons ici les hypothèses sur lesquelles repose le modèle d'écoulement vidange :

- Le gaz relâché par une bouffée est associé à un réservoir disponible de gaz. Le volume du réservoir est considéré comme constant pendant le TT.
- Nous négligeons le mécanisme de thermodiffusion des atomes de gaz de fission (faible pour 1200°C), nous ne modélisons que l'écoulement dû au gradient de pression entre le réservoir disponible de gaz et le four.
- La géométrie des chemins de vidanges n'évolue pas pendant le palier isotherme, ce qui implique la constance du facteur perméabilité dans ces chemins.
- L'écoulement de gaz est laminaire pendant la vidange.
- Pour valider les résultats, nous évaluerons les ordres de grandeur de pression et de volume de réservoir de gaz à partir de l'équation des gaz parfait. Malgré des approximations inhérentes au modèle des gaz parfait, compte tenu des pressions et volumes molaires étudiés, cette loi simple nous permet néanmoins d'estimer les ordres de grandeur qui nous intéressent.

Nous procéderons dans un premier temps à l'ajustement de l'équation 15 avec la dérivée logarithmique des données expérimentales pour déterminer les paramètres C et τ :

$$D \log (RGF_{Kr85}) = \frac{4 \cdot C \cdot P_e \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)}{\tau \cdot \left(C \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - 1\right)^2} \times \left(\frac{2 \cdot P_e}{C \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - 1} + P_e \right) \quad (15)$$

Dans un second temps, nous implémenterons le jeu de paramètres obtenu afin d'ajuster l'équation 13 avec les données expérimentales et ainsi évaluer le paramètre λ :

$$RGF_{Kr85} = \lambda \times \left(\left(\frac{2 \cdot P_e}{C \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) - 1} + P_e \right)^2 - P_e^2 \right) \quad (13)$$

La valeur de P_e est connue et correspond à la valeur de la pression dans le four pendant le traitement thermique. On définit t_0 pendant la cinétique de vidange en fonction d'un indicateur de qualité défini au chapitre précédent et qui permet d'identifier l'intervalle d'ajustement optimal.

Rappel bibliographique du chapitre 1 :

- La troisième bouffée correspond essentiellement au relâchement d'un réservoir de gaz disponible situé dans l'HBS. (section 1.5.1)
- La pression dans les bulles intergranulaire du RIM est évaluée dans la littérature autour de 10 MPa à température ambiante. (section 1.3.2)
- Le RIM à une épaisseur d'environ 100 μm et une porosité comprise en 10 et 20% pour un taux de combustion autour de 60-70 GW_j/t_U (section 1.3.1)
- A partir de sa porosité, on peut évaluer le volume des bulles du RIM à environ 3 à 7 mm^3 dans une pastille de 60-70 GW_j/t_U (Volume d'une pastille 678 mm^3 , volume du RIM : 30 mm^3) (section 1.2.1 et 1.3.1)
- Imposer une pression hydrostatique autour de l'échantillon combustible lors d'un TT réduit le relâchement des gaz de fission. Des travaux évaluent une pression hydrostatique minimale comprise entre 30 et 60 MPa pour que l'échantillon commence à relâcher. (section 1.3.2)

4.1 AJUSTEMENT DU MODELE SUR LA TROISIEME BOUFFEE DE RELACHEMENT

La troisième bouffée de relâchement est la plus simple à appréhender avec notre modèle. Nous disposons dans la base de données de TT réalisé avec des paliers isothermes maintenu sur plusieurs heures à 1200°C. De plus, il s'agit généralement de la bouffée la plus importante en termes de quantité de gaz relâché. Sa cinétique est donc relativement plus fiable à interpréter, car elle s'appuie sur des mesures plus précises et avec plus de points expérimentaux.

4.1.1 Ajustement du modèle sur la troisième bouffée du TT 23

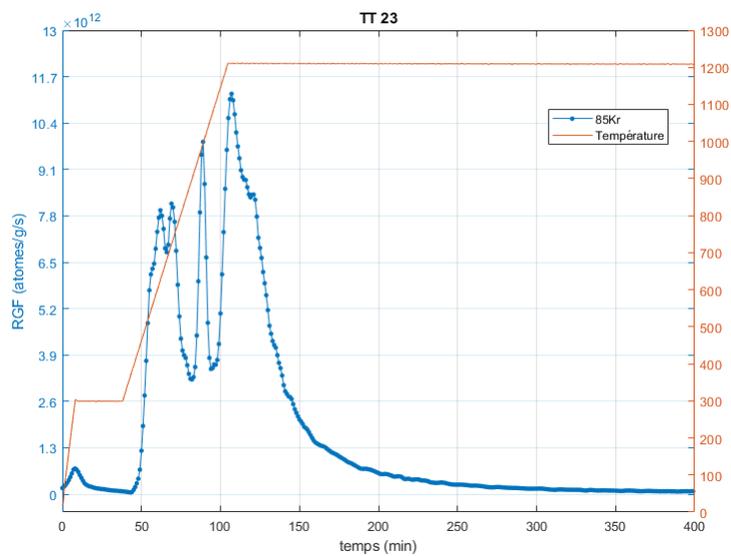
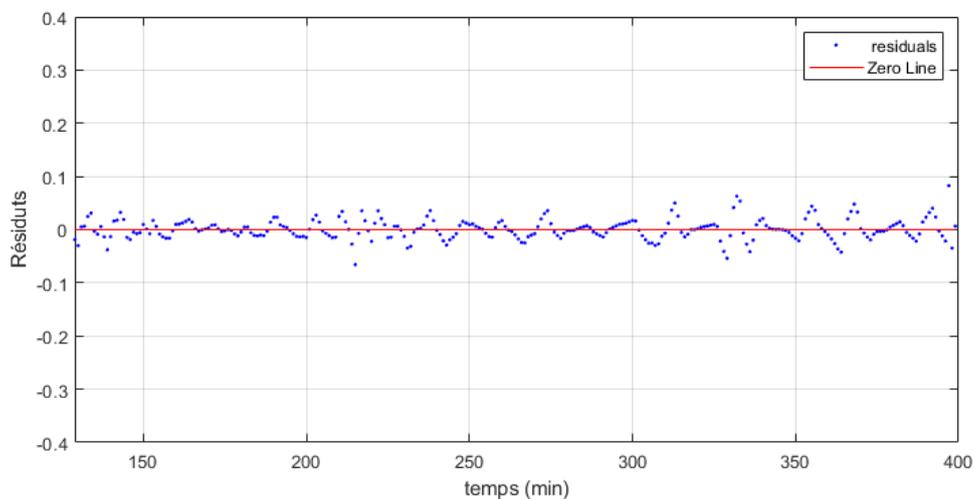
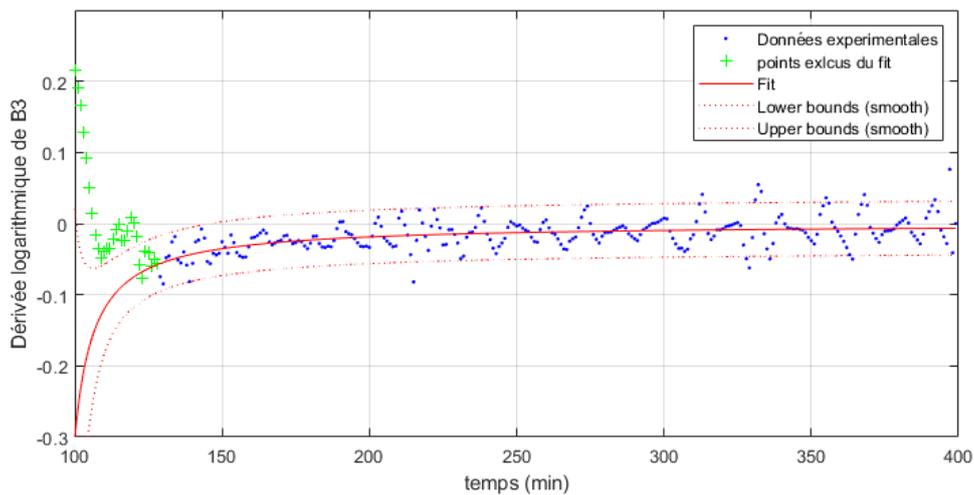


FIGURE 4.1-1 CINETIQUE DE RELACHEMENT DU ^{85}Kr DU TT 23



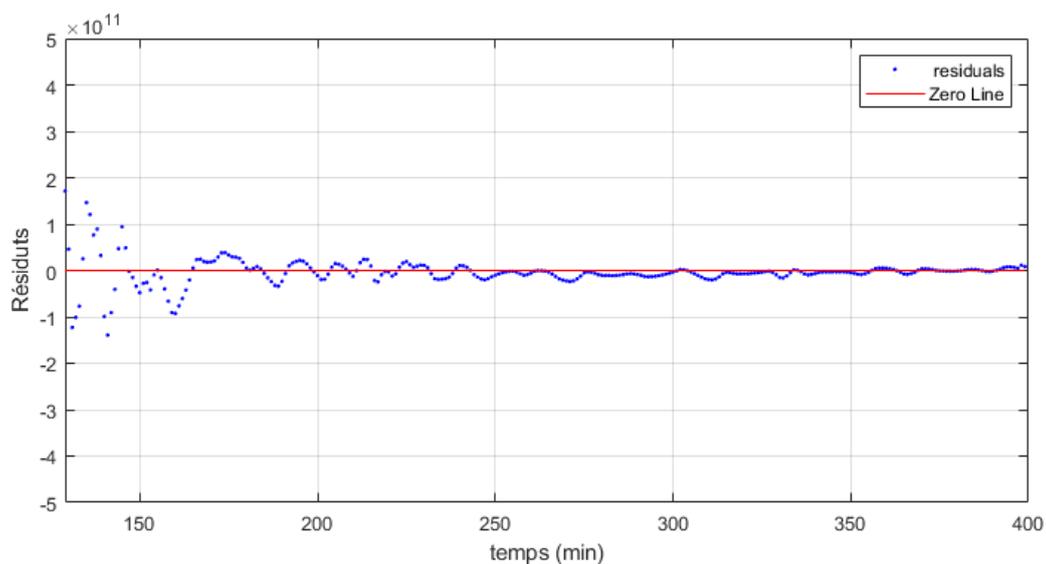
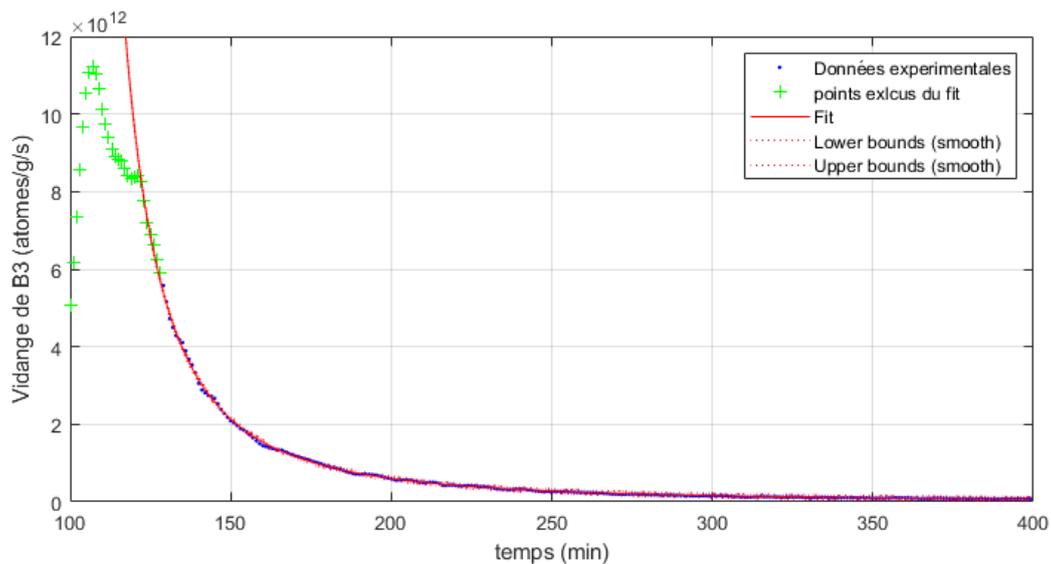


FIGURE 4.1-2 AJUSTEMENT DU MODELE (ROUGE) AVEC LES DONNEES EXPERIMENTALES DE B3 (BLEU) ET LES RESIDUS DE L'AJUSTEMENT (EN BAS). EN HAUT (PAGE 99) DE LA DERIVEE LOGARITHMIQUE, A BAS (PAGE 100) SUR LES DONNEES EXPERIMENTALES.

Résultats du fit :

$C = 1,018$ (sans unité)
 $P_e = 1,262$ Bar
 $\lambda = 2,718 \cdot 10^8$ [SI]
 $t_0 = 129$ min
 $\tau = -1990$ s

Indicateur de qualité :

REQM : $3,0045 \cdot 10^{10}$ at/g/s
 Valeur moyenne sur l'intervalle de fit : $0,4588 \cdot 10^{12}$ at/g/s
Coefficient de variation = 6,55%

4.1.2 Ajustement du modèle sur la troisième bouffée du TT 79

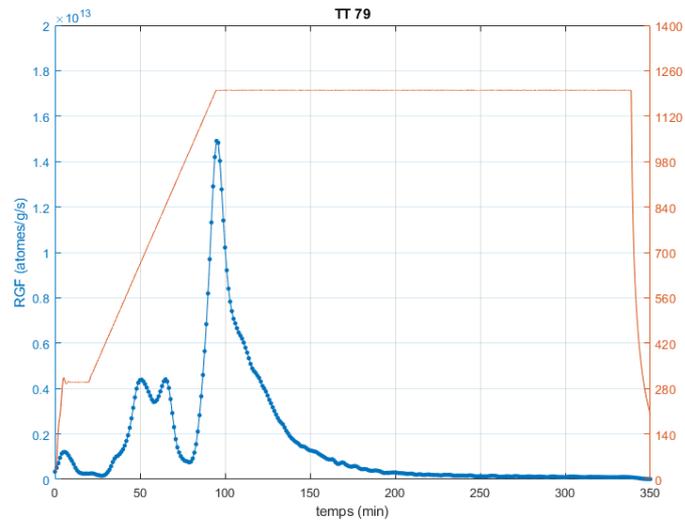
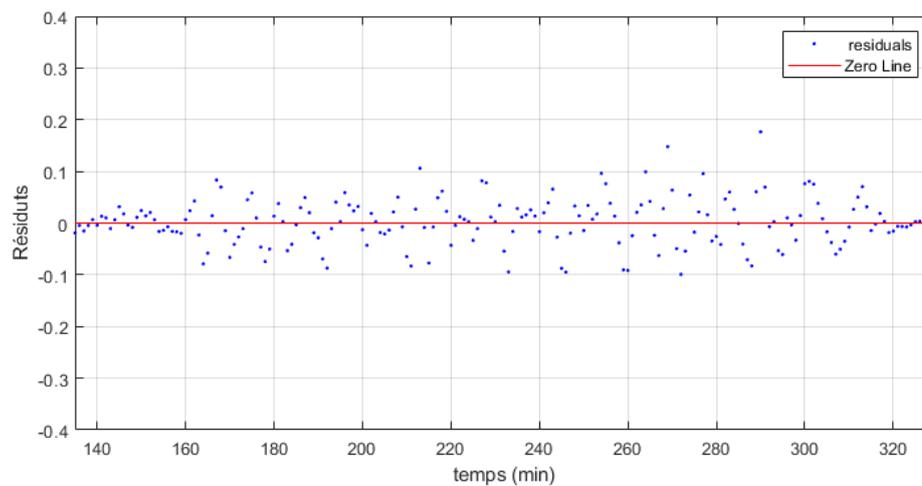
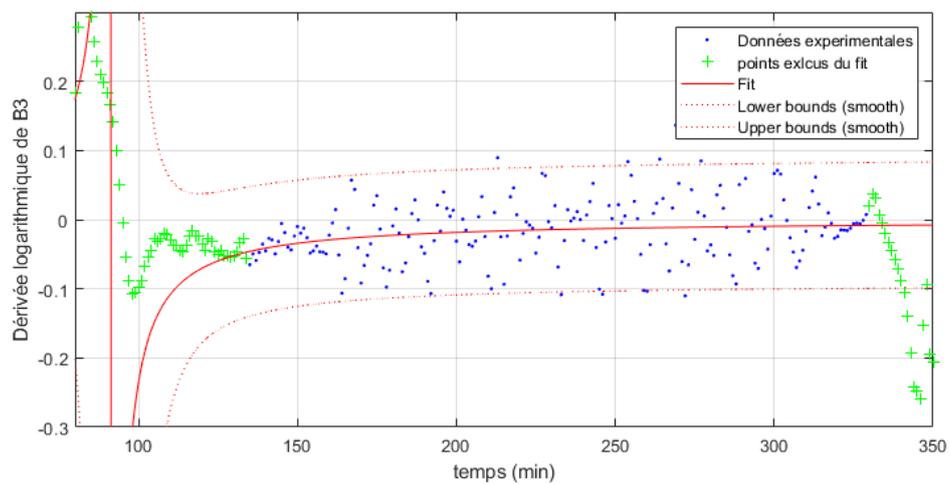


FIGURE 4.1-3 CINETIQUE DE RELACHEMENT DU 85KR DU TT 79



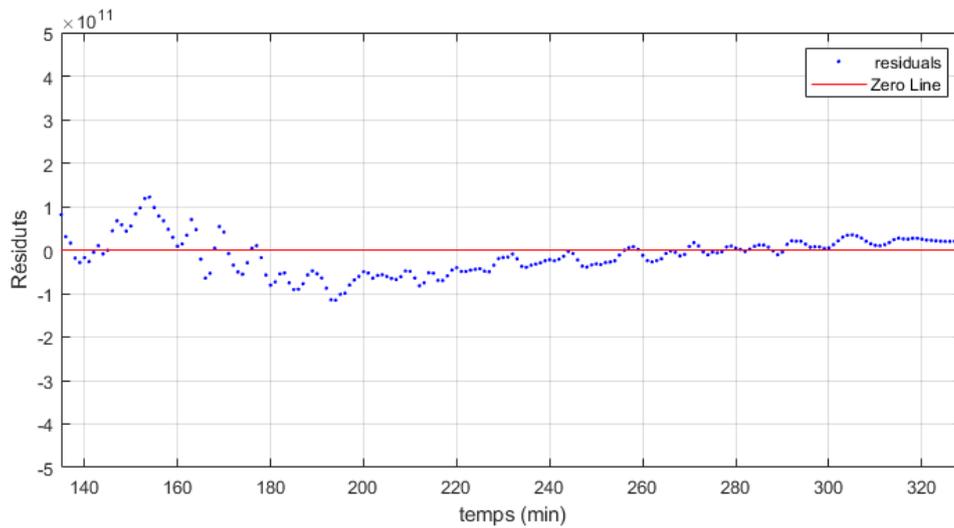
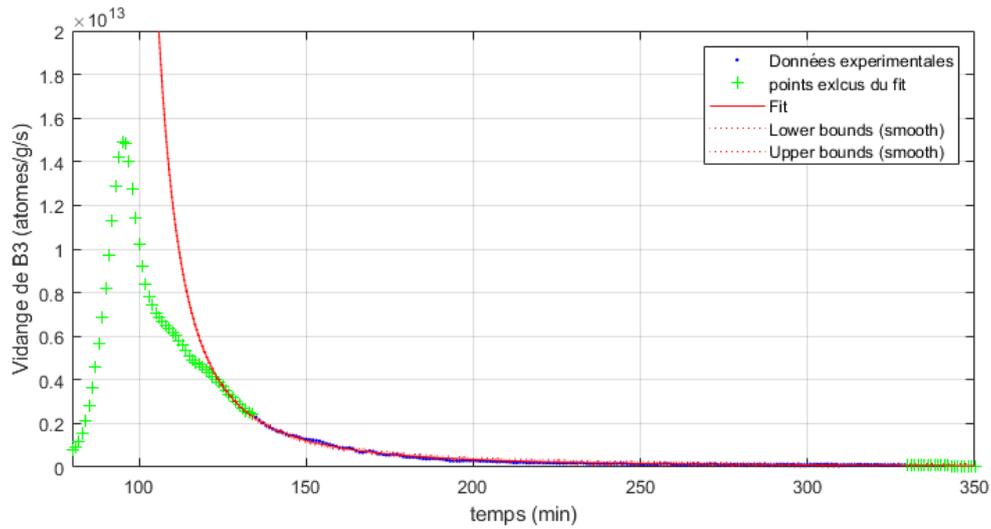


FIGURE 4.1-4 AJUSTEMENT DU MODELE (ROUGE) AVEC LES DONNEES EXPERIMENTALES DE B3 (BLEU) ET LES RESIDUS DE L'AJUSTEMENT (EN BAS). EN HAUT (PAGE 101) DE LA DERIVEE LOGARITHMIQUE, A BAS (PAGE 102) SUR LES DONNEES EXPERIMENTALES.

Résultats du fit :

$C = 1,023$ (sans unité)
 $P_e = 1,203$ Bar
 $\lambda = 1,894 \cdot 10^8$ [SI]
 $t_0 = 135$ min
 $\tau = -1965$ s

Indicateur de qualité :

REQM : $4.4682 \cdot 10^{10}$ at/g/s
 Valeur moyenne sur l'intervalle de fit : $0.4172 \cdot 10^{12}$ at/g/s
Coefficient de variation = 10,71%

TT	t_0 (min)	P_e (bar)	C	τ (s)	λ
23	129	1,262	1,018	-1990	2,72E+08
79	135	1,203	1,023	-1965	1,89E+08

TABLEAU 4.1-1 PARAMETRES D'AJUSTEMENT OBTENU POUR B3 SUR LES DEUX TRAITEMENTS THERMIQUES 23 ET 79

L'ajustement du modèle d'écoulement vidange sur les données expérimentales est de bonne qualité sur ces deux TT. Le coefficient de variation est strictement inférieur à 15%, ce qui indique une bonne qualité d'ajustement du modèle sur la cinétique de relâchement du 85Kr. La valeur respective des paramètres ajustés, C, τ et λ , sont par ailleurs proches entre les deux ajustements.

On remarquera que le modèle ne s'ajuste pas dès le début de la décroissance de la bouffée, mais plusieurs dizaines de minutes après (entre 20 et 40 min). En effet, avant d'adopter une cinétique vidange au tout début du palier isotherme et pendant environ 30 minutes, on observe un phénomène transitoire qui se juxtapose à la vidange. Une première décroissance du relâchement, plus lente, qui peut s'interpréter comme un phénomène d'alimentation du réservoir de gaz disponible superposé au phénomène de vidange de B3. Dans le prolongement de ce phénomène transitoire, on notera également une plus forte dispersion des résidus de l'ajustement du modèle au début de la phase de vidange pour les deux TT. Nous discuterons de ce phénomène après avoir interprété les résultats des ajustements de courbes, dans le chapitre suivant.

4.2 INTERPRETATIONS DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT DE B3

Si les indicateurs de qualité des ajustements indiquent une bonne fidélité dans la description de l'écoulement vidange par le modèle, il est nécessaire d'aller plus loin dans l'interprétation des paramètres de l'ajustement : C , τ et λ . Le paramètre λ est relié à τ et est le plus difficile à interpréter, car il fait également office de facteur d'échelle pour l'ajustement vidange. C , τ ont été déterminés quant à eux de manière plus robuste, car ils s'ajustent à la fois sur la dérivée logarithmique du relâchement et sur la cinétique vidange de la mesure du relâchement. Nous nous concentrerons donc sur l'interprétation de ces deux paramètres.

4.2.1 Évaluation de la valeur de pression du réservoir de gaz associé à B3

La pression du réservoir disponible du gaz varie avec la température. Dans un premier temps la pression va augmenter de manière linéaire avec la température. Puis, lorsque le réservoir s'ouvre vers les surfaces libres, au moment où la bouffée entame sa croissance, la pression va également diminuer en raison de la vidange des gaz. Nous nous intéressons ici à la pression du réservoir au moment où le réservoir disponible de la troisième bouffée s'ouvre.

À partir du paramètre C et de l'équation 10.1, on peut calculer la valeur P_0 , c'est-à-dire la valeur de la pression à t_0 , pendant la phase de vidange :

$$P_0 = P_e \left(\left(\frac{2}{C-1} \right) + 1 \right) \quad (15)$$

Comme le relâchement de B3 a commencé avant le temps t_0 , la valeur P_0 est logiquement plus faible que la pression initiale du réservoir disponible de B3, mais sa valeur est facilement accessible via les équations du modèle d'écoulement vidange. Pour évaluer la pression initiale du réservoir disponible, nous nous appuyerons sur la loi des gaz parfaits et nous considérerons que le volume du réservoir est constant pendant le relâchement de B3 :

$$P_r = P_0 \cdot \frac{N_{tot}}{N_0} \cdot \frac{T_r}{T_0} \quad (16)$$

Avec :

P_r : la pression initiale du réservoir de gaz disponible de B3 en bars

P_0 : la pression du réservoir de gaz à t_0 en bars

N_{tot} : la quantité de gaz totale de B3 en nombre d'atomes par gramme

N_0 : la quantité de gaz dans le réservoir à t_0 en nombre d'atomes par gramme

T_r : la température à l'ouverture du réservoir de B3 en K

T_0 : la température à t_0 en K

TABLEAU 4.2-1 INTERPRETATION DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT POUR EVALUER LA PRESSION INITIALE DU RESERVOIR DE GAZ DISPONIBLE AU DEBUT DU RELACHEMENT DE B3

TT	C	P_0 (bars)	T_r (°C)	N_{tot} (at/g)	N_0 (at/g)	P_r (bars)
23	1,018	141 ±9,2	1062	2,66E+16	1,05E+16	325 ±21,3
79	1,023	106 ±11,4	1011	2,48E+16	4,81E+15	476 ±61

Les valeurs de P_r obtenues sont du même ordre de grandeur pour les deux exemples. À partir de la loi de Gay-Lussac, il est possible d'évaluer la valeur de la pression du réservoir de gaz disponible à température ambiante :

$$P_a = P_r \cdot \frac{T_a}{T_r} \quad (17)$$

Avec :

P_a : Pression du réservoir disponible de gaz à température ambiante en bars

T_a : la température ambiante en K

TABLEAU 4.2-2 INTERPRETATION DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT POUR EVALUER LA PRESSION DU RESERVOIR DE GAZ DISPONIBLE DE B3 A TEMPERATURE AMBIANTE

TT	T_r (°C)	P_r (bars)	P_a (bars)
23	1062	325 ±21,3	73 ±4,8
79	1011	476 ±61	111 ±11,9

Nous obtenons une valeur de pression de réservoir de B3 à température ambiante entre 73 et 111 bars. Ces valeurs sont proches de la pression des bulles de gaz intergranulaire de l'HBS du RIM dans l'UO₂ irradié, qui s'élève autour de 100 bars (cf section 1.3.2).

4.2.2 Évaluation du volume du réservoir de gaz associé à B3

Le volume du réservoir de gaz disponible de B3 est considéré comme constant au cours du TT. Ne mesurant que le relâchement de 85Kr, ce volume ne correspond qu'à celui occupé par cet isotope du krypton uniquement.

À partir de la valeur de P_0 , il est possible d'évaluer le volume du réservoir de gaz dans l'échantillon, V_i à partir de la loi des gaz parfaits :

$$V_i = \frac{N_0 \cdot k_B \cdot T_0}{P_0} \quad (18)$$

Avec :

V_i : le volume du réservoir de 85Kr disponible associé à B3 en m^3

P_0 : la pression du réservoir de gaz à t_0 en Pa

k_B : la constante de Boltzmann

N_0 : le nombre d'atomes de 85Kr dans le réservoir à t_0

T_0 : la température à t_0 en K

TABLEAU 4.2-3 INTERPRETATION DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT POUR EVALUER LE VOLUME DU RESERVOIR DISPONIBLE DE 85Kr DE B3

TT	$V_i (m^3)$	$V_i (mm^3)$
23	9,56E-11	0,10 ±0,01
79	5,65E-11	0,06 ±0,01

Si l'on considère que le réservoir de gaz disponible est exclusivement composé de gaz rares, c'est-à-dire du Xénon et du Krypton, on peut déterminer le volume de ce réservoir avec la formule suivante :

$$V_{tot} = \frac{V_i \cdot r_{gaz}}{r_{85Kr}} \quad (19)$$

Avec :

r_{gaz} : Le rendement cumulé de fission des PF gazeux = 16,24 % (14,65 pour le Xe et 1,59 pour le Kr)

r_{85Kr} : Le rendement cumulé de fission du Kr85 = 0,3 % [109]

V_i : le volume du réservoir disponible de 85Kr associé à B3 en m^3

V_{tot} : le volume du réservoir disponible de gaz rares associés à B3 en m^3

TT	$V_i (mm^3)$	$V_{tot} (mm^3)$
23	0,10 ±0,01	5,41±0,4
79	0,06 ±0,01	3,23 ±0,3

TABLEAU 4.2-4 INTERPRETATION DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT POUR EVALUER LE VOLUME DU RESERVOIR DISPONIBLE DE GAZ RARES DE B3

Les valeurs obtenues pour V_{tot} sont proches du volume de la porosité du RIM dans l' UO_2 irradié que l'on a estimé de 3 à 7 mm^3 .

4.2.3 Évaluation du facteur de perméabilité

À partir du paramètre τ , on peut déterminer la perméabilité intrinsèque K des chemins empruntés par le gaz pendant la phase de vidange :

$$\tau = -\frac{\mu \cdot L \cdot V_i}{P_e \cdot K \cdot S} \quad (10.2) \quad S = \pi \times R^2 \quad \text{et comme } K = \frac{R^2}{8} \quad \text{alors : } K = \sqrt{-\frac{\mu \cdot L \cdot V_i}{P_e \cdot 8 \pi \tau}} \quad (20)$$

Avec :

μ : la viscosité dynamique du 85Kr ($=55,9 \cdot 10^{-6}$ Pa·s à 1200°C)

L : la longueur du chemin de vidange en m

V_i : le volume du réservoir disponible associé à B3 en m³

P_e : la pression dans le four en Pa

K : perméabilité intrinsèque du chemin de vidange pendant le palier isotherme en m²

Nous ignorons la valeur de la longueur du chemin de vidange, L . Comme nous supposons que le réservoir de gaz disponible de B3 correspond aux bulles intergranulaire du RIM, il est raisonnable d'évaluer cette longueur autour de 50 μ m, soit la moitié de la largeur du RIM.

TT	K (m ²)
23	$6,67 \cdot 10^{-15} \pm 0,44 \cdot 10^{-15}$
79	$5,16 \cdot 10^{-15} \pm 0,55 \cdot 10^{-15}$

TABLEAU 4.2-5 INTERPRETATION DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT POUR EVALUER LA PERMEABILITE DES CHEMINS EMPRUNTES PENDANT LE RELACHEMENT DE B3

Les valeurs de K obtenues pour les TT 23 et 79 sont très proches. Il est difficile de comparer la valeur de perméabilité obtenue tant la littérature est très peu abondante sur le sujet. Cette difficulté est accentuée d'autant plus que nous évaluons la perméabilité d'un échantillon combustible irradié, en traitement thermique, pendant un palier à haute température. La perméabilité a très certainement varié avec l'extraction des gaz de fission et il n'est pas impossible que cette perméabilité puisse varier également avec la chute de température en fin de TT. Dès lors il apparaît complexe de confirmer ou d'infirmer ces valeurs.

À partir de la perméabilité intrinsèque, nous pouvons néanmoins raisonner en termes de rayon de chemin de relâchement. Nous avons évoqué un chapitre précédent (3.2.3) la formule de Poiseuille qui permet de relier la perméabilité au rayon d'un canal traversé par le fluide. C'est l'une des simplifications sur laquelle repose notre modélisation, le chemin est assimilé à un simple canal rectiligne. Ainsi le rayon du canal se détermine par la formule suivante : $R = \sqrt{8 \times K}$

TT	K (m²)	R (nm)
23	6,67 · 10 ⁻¹⁵	231
79	5,16 · 10 ⁻¹⁵	203

TABLEAU 4.2-6 INTERPRETATION DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT POUR EVALUER LA TAILLE D'UN CHEMIN EQUIVALENT EMPRUNTE PAR LES GAZ LORS DE LA VIDANGE

La réalité de la géométrie de la porosité cinématique dans l'échantillon est plus complexe et sûrement plus tortueuse qu'un seul chemin prenant la forme d'un cylindre droit. Il est improbable qu'il n'y ait qu'un seul chemin et il est difficile d'en évaluer un nombre crédible. Néanmoins, le rayon de chemin obtenu par notre méthode vaut approximativement 200 nm et constitue une borne maximale de rayon que les chemins réels ne peuvent dépasser. Des travaux de physiques relatifs à l'étude des écoulements dans une structure poreuse ont d'ailleurs permis de déterminer une relation quasi linéaire entre la perméabilité intrinsèque et le nombre de chemins ouverts d'un milieu considéré [110]. Ainsi, en considérant que tous les chemins ont le même rayon et à partir de la formule de poiseuille évoqué au chapitre 4, on pourrait exprimer le rayon des chemins ouverts en fonction de la perméabilité et des effectifs des chemins :

$$R = \sqrt{\frac{8 \times K}{n_c}} \quad (21)$$

Avec :

R : le rayon des chemins en m

K : la perméabilité intrinsèque en m²

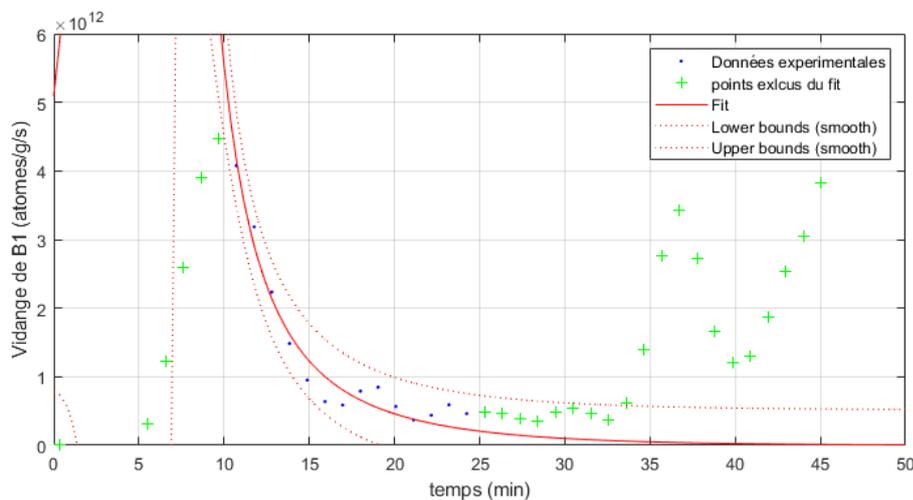
n_c : le nombre de chemins ouverts

Sans avoir la possibilité d'évaluer un nombre de chemins physiquement cohérents, nous pouvons néanmoins affirmer qu'avec une taille strictement inférieure 0,2 μm, ces chemins seront difficilement observables expérimentalement. Cela est d'autant plus vrai qu'il s'agit d'une évaluation de leur taille pendant le palier isotherme à 1200°C et non lors du retour à froid.

4.3 AJUSTEMENT DU MODELE SUR LA PREMIERE BOUFFEE DE RELACHEMENT

La première bouffée B1 s'observe de manière récurrente, mais pas systématique dans la base de données de MERARG. Le protocole thermique classique en TT qui impose un court palier isotherme de thermalisation à 300°C nous permet d'appréhender sa vidange facilement. D'un point de vue cinétique, B1 correspond à un relâchement de gaz moindre et vidange beaucoup plus rapidement que lors de B3. En conséquence, la courbe de relâchement fait apparaître moins de points expérimentaux. De ce fait les incertitudes, tant liées à la mesure qu'à la déconvolution, sont plus importantes et la dérivée logarithmique de sa cinétique est beaucoup plus instable numériquement. C'est la raison pour laquelle nous n'avons procédé pour B1 qu'à l'ajustement de l'équation 13 sur les données expérimentales. Compte tenu de la forte interdépendance des paramètres C , τ et λ , permettant un large éventail de solution pour obtenir un ajustement satisfaisant, nous adopterons pour B1 une approche statistique. Nous évaluerons dans un premier temps la plage de valeur qu'adopte λ pour s'ajuster aux données expérimentales et nous en déterminerons sa moyenne géométrique. En fixant la valeur de λ à cette moyenne, nous obtiendrons une évaluation des autres paramètres, C et τ , de manière plus stable. Cependant, l'interprétation des résultats devra tenir compte des incertitudes inhérentes à cette approche.

4.3.1 Ajustement du modèle sur la première bouffée du TT 34



Résultats du fit :

$C = 1,877$ (s.a.)
 $P_e = 1,19$ Bar
 $\lambda = 4 \cdot 10^{11}$
 $t_0 = 10$ min
 $\tau = -7,79$ s

FIGURE 4.3-1 AJUSTEMENT DU MODELE (ROUGE) AVEC LES DONNEES EXPERIMENTALES DE B1 (BLEU) DU TT 34.

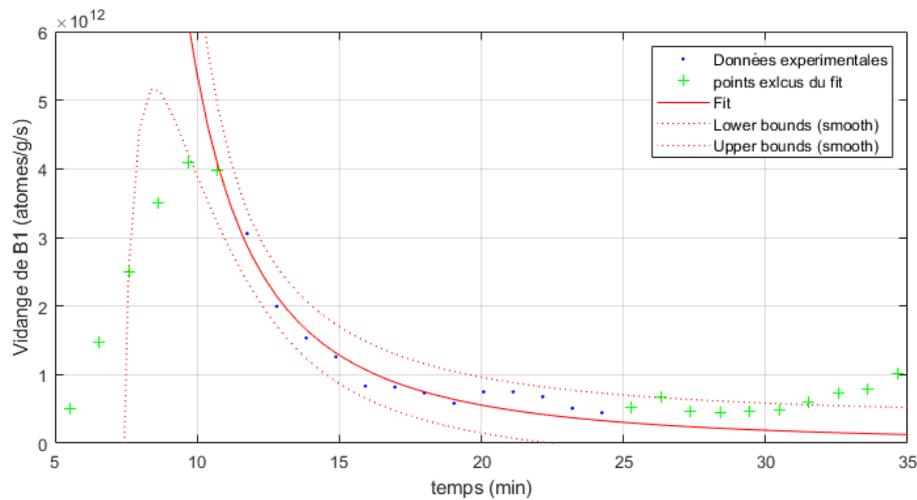
Indicateur de qualité :

REQM : $2,3707 \cdot 10^{11}$

Valeur moyenne sur l'intervalle de fit : $1,5917 \cdot 10^{12}$

Coefficient de variation = 14,9%

4.3.2 Ajustement du modèle sur la première bouffée du TT 35



Résultats du fit :

$$C = 1,246 \text{ (s.a.)}$$

$$P_e = 1,19 \text{ bar}$$

$$\lambda = 3,16 \cdot 10^{10}$$

$$t_0 = 11 \text{ min}$$

$$\tau = -26,48 \text{ s}$$

FIGURE 4.3-2 AJUSTEMENT DU MODELE (ROUGE) AVEC LES DONNEES EXPERIMENTALES DE B1 (BLEU) DU TT 35.

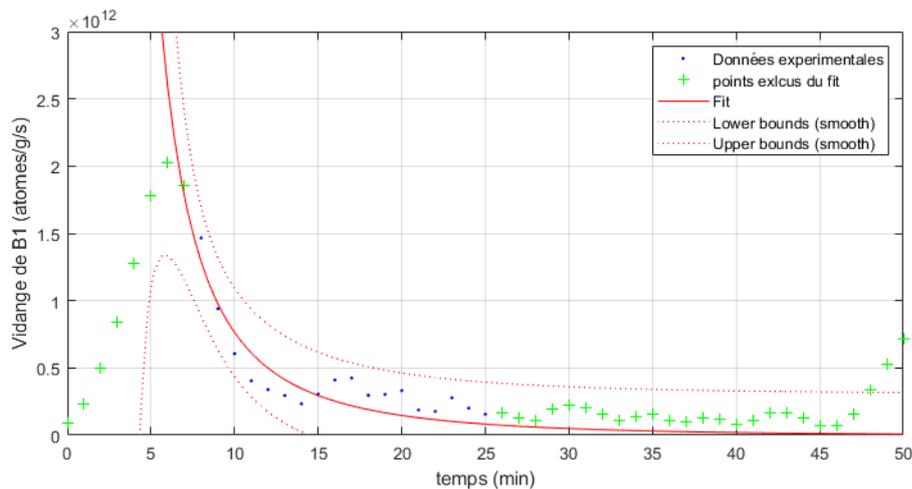
Indicateur de qualité :

$$\text{REQM} : 1,777 \cdot 10^{11}$$

Valeur moyenne sur l'intervalle de fit : $1.6962 \cdot 10^{12}$

Coefficient de variation = 10,5%

4.3.3 Ajustement du modèle sur la première bouffée du TT 78



Résultats du fit :

$$C = 1,739 \text{ (s.a.)}$$

$$P_e = 1,203 \text{ bar}$$

$$\lambda = 7 \cdot 10^{10}$$

$$t_0 = 8 \text{ min}$$

$$\tau = -12,5 \text{ s}$$

FIGURE 4.3-3 AJUSTEMENT DU MODELE (ROUGE) AVEC LES DONNEES EXPERIMENTALES DE B1 (BLEU) DU TT 78.

Indicateur de qualité :

$$\text{REQM} : 1,457 \cdot 10^{11}$$

Valeur moyenne sur l'intervalle de fit : $6.853 \cdot 10^{11}$

Coefficient de variation = 21,3%

TT	t_0 (min)	P_e (bar)	λ	C	T (s)
34	10	1,19	$4 \cdot 10^{11}$	1,877	-7,786
35	11	1,19	$3,16 \cdot 10^{10}$	1,246	-26,48
78	8	1,203	$7 \cdot 10^{10}$	1,739	-12,5

TABLEAU 4.3-1 PARAMETRES D'AJUSTEMENT OBTENU POUR B1 SUR LES TROIS TRAITEMENTS THERMIQUES 34, 35 ET 78

Bien qu'il y ait plus d'incertitude sur les résultats des paramètres d'ajustement obtenue sur B1 par rapport à B3, on notera que les valeurs obtenues sont relativement proches, en particulier pour τ .

4.4 INTERPRETATIONS DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT DE B1

À l'instar de B3, nous allons appliquer le même raisonnement à l'interprétation des paramètres d'ajustement de B1.

4.4.1 Évaluation de la valeur de pression du réservoir de gaz associé à B1

Comme précédemment, nous déterminerons et reportons dans le Tableau 4.4-1 les valeurs de pression du réservoir de B1 à t_0 , puis la pression initiale où le réservoir commence à relâcher. Contrairement à B3, B1 relâche dès le début de la rampe de température, on peut donc considérer que la pression au moment de l'ouverture du réservoir de B1 et sa pression à température ambiante est identique.

Ainsi :

$$P_a = P_r = P_0 \cdot \frac{N_{tot}}{N_0} \cdot \frac{T_r}{T_0} \quad (22)$$

Avec :

P_r : la pression initiale du réservoir de gaz disponible de B1 en bars

P_0 : la pression du réservoir de gaz à t_0 en Bars

N_{tot} : la quantité de gaz totale de B3 en nombre d'atomes par gramme

N_0 : la quantité de gaz dans le réservoir à t_0 en nombre d'atomes par gramme

T_r : la température à l'ouverture du réservoir de B3 en K (ici égale à la température ambiante)

T_0 : la température à t_0 en K

TABLEAU 4.4-1 INTERPRETATION DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT POUR EVALUER LA PRESSION DU RESERVOIR DE GAZ DISPONIBLE DE B1 A TEMPERATURE AMBIANTE

TT	P_0 (bars)	P_a (bars)
34	$4 \pm 0,6$	$12 \pm 1,8$
35	$12 \pm 1,3$	$34 \pm 3,6$
78	$5 \pm 1,1$	$17 \pm 3,6$

La pression initiale et à température ambiante du réservoir de B1 est bien plus faible que pour B3. Ces valeurs, bien que déterminées avec plus d'incertitude, ne peuvent pas être reliées à des pressions de réservoir de gaz connu dans le combustible à partir de la littérature.

4.4.2 Évaluation du volume du réservoir de gaz associé à B1

En utilisant la même méthode que précédemment pour B3, nous obtenons un volume du réservoir de 85Kr associé à B1, dans le même ordre de grandeur que B3. Cela s'explique par les valeurs plus faibles de pression et de quantité de gaz relâché. Finalement, les valeurs obtenues pour la pression et le volume occupé par le gaz relâché lors de B1 ne correspondent à aucun réservoir connu présent dans le combustible. Les résultats sont reportés dans le Tableau 4.4-2.

TABLEAU 4.4-2 INTERPRETATION DES PARAMETRES D'AJUSTEMENT POUR EVALUER LE VOLUME DU RESERVOIR DE GAZ DISPONIBLE DE B1

TT	N_{tot}	N_0	V_i (mm^3)
34	$1,80E+15$	$1,17E+15$	$0,11 \pm 0,02$
35	$1,80E+15$	$1,17E+15$	$0,04 \pm 0,01$
78	$9,43E+14$	$4,81E+14$	$0,05 \pm 0,01$

4.4.3 Discussion sur l'origine de B1

Nous avons vu que le relâchement de la première bouffée suivait une cinétique cohérente avec les hypothèses du modèle d'écoulement vidange. Cependant les résultats de l'ajustement indiquent que le réservoir de gaz associé à B1 est de petite taille, faiblement dense en gaz et sous une pression également faible (en particulier en comparaison avec B3). La littérature ne présente pas dans le combustible irradié de réservoirs de gaz évident et compatible avec ces caractéristiques, contrairement à B3 et les bulles intergranulaires du RIM. Nous voulons néanmoins rapprocher B1, qui est un relâchement à faible température, avec un autre relâchement qui a été observé lors de certains traitements thermiques dans MERARG : le relâchement à froid. (cf 2.7.2 et la Figure 2.7-2 Mesure d'un relâchement de gaz avant le début du traitement thermique ($T=-40min$)). Comme nous l'avons précédemment évoqué, l'existence d'un

relâchement à froid pourrait impliquer potentiellement la préexistence de chemin de vidange associé. Si l'on tient compte du protocole et du conditionnement de l'échantillon combustible placé dans le creuset de MERARG, comme décrit dans la section 1.4.1 « Préparation d'un traitement thermique », on notera que le crayon combustible père subit une étape découpe pour aboutir à l'échantillon. Ainsi, une petite partie des gaz se relâchent pendant l'étape de découpe. On peut poser l'hypothèse qu'une partie du réservoir de gaz ouvert par la découpe de l'échantillon n'a pas entièrement relâchée. Dès lors, au moment où l'on impose une contrainte thermique faible ($\sim 100^\circ\text{C}$), la pression atteinte par les réservoirs de gaz en question pourrait être suffisante pour les relâcher le gaz restant vers les surfaces libres. Nous proposons l'hypothèse que le relâchement associé à B1 pourrait donc être lié aux modalités de préparation de l'échantillon.

4.5 AJUSTEMENT DU MODELE SUR LA DEUXIEME BOUFFEE DE RELACHEMENT

La deuxième bouffée de relâchement (B2) est moins évidente à analyser que les deux autres. En effet, il n'existe pas dans la base de données des TT réalisés dans MERARG, de TT avec maintien en température isotherme au niveau du relâchement de B2, afin d'en mesurer la vidange. Il existe bien des TT qui s'arrêtent avant 1000°C , mais la température chute trop rapidement pour pouvoir mesurer la cinétique de vidange qui nous intéresse. Nous avons donc défini un protocole expérimental afin d'acquérir les données de vidange de B2. Nous décrirons ce protocole et les résultats des traitements thermiques, puis nous analyserons ses résultats.

4.5.1 Réalisation d'un traitement thermique dédié

Nous l'avons vu dans le chapitre 3, la deuxième bouffée de relâchement débute en général autour d'une température de $400/500^\circ\text{C}$, dès le début de la rampe de température post-palier isotherme à 300°C . Elle atteint son pic autour de 800°C avant de décroître et d'adopter une cinétique plus difficile à appréhender (décroissance ou stagnation du relâchement). Nous avons donc décidé de réaliser un traitement thermique sur un échantillon issu d'un crayon très étudié au cours de cette thèse, et dont nous connaissons bien la cinétique de relâchement.

Nous avons donc choisi le protocole thermique suivant :

1. Palier de thermalisation à 300°C de 25 minutes
2. Rampe de température de $0,2^\circ\text{C/s}$
3. Premier palier isotherme à 750°C jusqu'à $\text{FGR} = 0$
4. Rampe de température de $0,2^\circ\text{C/s}$
5. Deuxième palier isotherme à 850°C jusqu'à $\text{FGR} = 0$

La Figure 4.5-1 reprend la cinétique du relâchement de ce traitement thermique.

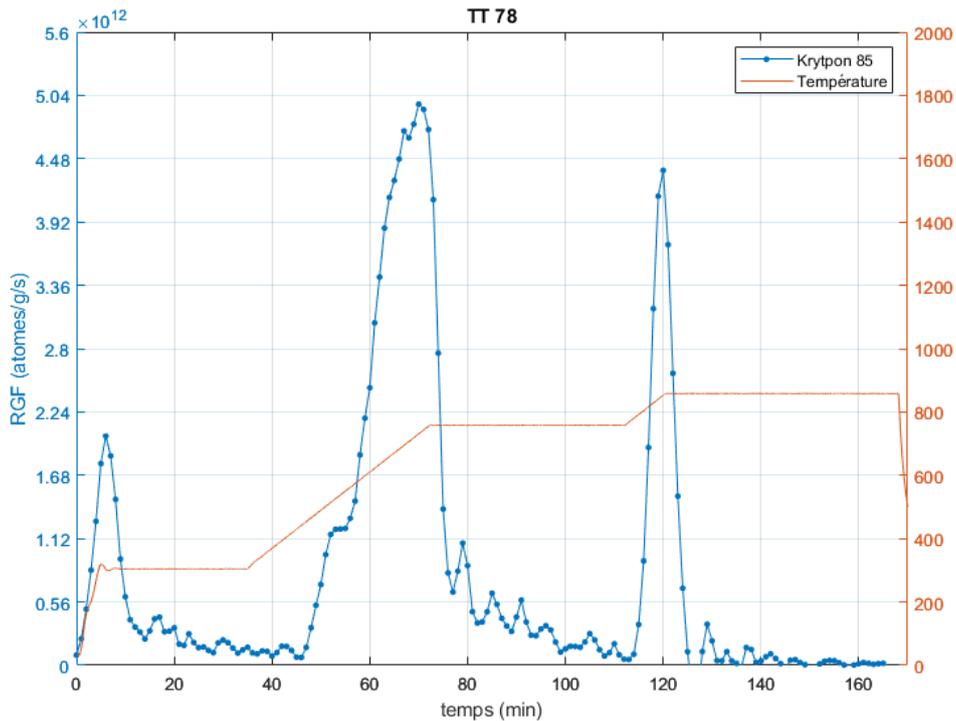


FIGURE 4.5-1 CINETIQUE DE RELACHEMENT DE ^{85}Kr AU COURS DU TT 78 AVEC DEUX PALIERS ISOTHERMES A 750°C ET 850°C .

4.5.2 Analyse des résultats

La cinétique de décroissance de B2, que ce soit pendant le palier de 750°C ou le palier de 850°C est très rapide. Le modèle d'écoulement vidange ne s'ajuste pas avec la cinétique de B2. Même le lissage des données pour diminuer les variations du relâchement pendant le palier isotherme ne permet pas de procéder à un ajustement de courbe convenable avec le modèle. La décroissance pendant le second palier est plus rapide encore que la première, le relâchement semble adopter un relâchement quasi instantané.

Il apparait clairement que la décroissance de B2 en palier isotherme est radicalement différente de l'écoulement vidange de B3. Un relâchement relaxationnel aussi rapide pourrait s'expliquer du point de vue du modèle soit par une pression associée au réservoir de B2 très importante (supérieure à B3) et à une perméabilité plus importante que les deux autres bouffées (de larges chemins de vidange).

En conclusion, le modèle d'écoulement proposé dans ce manuscrit ne s'ajuste pas sur le relâchement associé à B2, ce qui implique que ses mécanismes de relâchement sont différents de ceux sur lesquels repose notre modèle. Une partie perspective au chapitre 6 s'attachera à discuter de ces résultats et les pistes exploratoires pour mieux les comprendre.

4.6 CONCLUSION DU CHAPITRE

Nous retiendrons que le modèle s'ajuste avec une excellente qualité aux données de la troisième bouffée. L'interprétation des résultats de l'ajustement nous permet d'évaluer des caractéristiques physiques propres à l'écoulement de B3 qui sont cohérentes avec un réservoir de gaz localisé préférentiellement dans la zone RIM. Ces résultats sont cohérents avec un mécanisme de décohésion des joints de grains pour expliquer le relâchement de B3. Néanmoins, le modèle ne nous a pas permis de comprendre l'origine d'un phénomène transitoire affectant le début de la décroissance isotherme du relâchement de B3. Nous voulons proposer trois hypothèses à explorer pour expliquer ce que nous avons identifié comme un phénomène d'alimentation du relâchement au tout début du palier isotherme de 1200 °C :

- Ouverture retardée de joint de grain : nous avons posé l'hypothèse dans le modèle d'écoulement vidange de l'invariance topologique des joints de grains ouverts, pendant le palier isotherme. Il est cependant envisageable de considérer que les joints de grains continuent de s'ouvrir peu après la fin de la rampe de température (en raison par exemple de leur fragilisation).
- Thermodiffusion : nous savons que la thermodiffusion participe de manière marginale au relâchement de 1200°C (section 1.5), on peut envisager que ce mécanisme est à l'origine du phénomène transitoire évoqué.
- Le débit de gaz dans MERARG : la méthode de déconvolution analytique postule que le débit de gaz dans MERARG est constant pendant le traitement thermique. Cependant, le changement de régime thermique (passage de la rampe au palier de température) pourrait affecter temporairement l'uniformité du débit, ce qui pourrait expliquer l'apparition d'une déformation du relâchement déconvolué.

L'ajustement du modèle nous permet également de décrire B1 comme un petit réservoir de gaz, faiblement dense et faiblement pressurisé, qui ne répond à aucun réservoir connu de la littérature au sein du combustible irradié.

La deuxième bouffée adopte un comportement cinétique très différent des deux autres. La cinétique de vidange en palier isotherme est bien plus rapide que pour B1 et B3, et le modèle ne permet pas de décrire son comportement. Cette différence notable laisse penser que les mécanismes à l'œuvre dans le relâchement de B2, son alimentation et sa vidange, sont peut-être de nature différente, et qu'il existe une autre force motrice à l'œuvre que celle du gradient de pression entre le réservoir de gaz disponible et l'extérieur de l'échantillon combustible.

5. CONCLUSION GENERALE

Ce travail de thèse porte sur la compréhension des mécanismes de relâchement des gaz de fission par le combustible nucléaire irradié, lorsqu'il est soumis à une excursion en température. Pour mieux comprendre les mécanismes en jeu, nous avons exploré la piste de l'analyse cinétique du relâchement des gaz de fission.

Au chapitre 2, nous avons défini une nouvelle méthode de traitement des données de relâchement de gaz de fission lors de traitements thermiques réalisés dans MERARG. Cette approche, plus robuste, corrige les 5 à 10% de courbes de relâchement déconvolué autrefois inexploitable. Ce nouvel outil nous a permis dans ce même chapitre d'analyser avec un regard nouveau l'ensemble de la base de données des traitements thermiques réalisés dans MERARG au cours des 25 dernières années. Sur la base de cette analyse, nous avons caractérisé de manière quantitative, les inventaires et les cinétiques de relâchements pour chaque bouffée en fonction des conditions expérimentales de chaque traitement thermique. Nous avons réalisé de nouveaux traitements thermiques pour compléter la base de données, susceptible de nous confirmer des phénomènes cinétiques suggérés par l'analyse phénoménologique. L'analyse de la cinétique de ces relâchements par bouffées suggère une logique de réservoir de gaz associé à chacune des bouffées et dont les mécanismes d'ouverture peuvent varier.

En nous appuyant sur l'analyse phénoménologique du relâchement par bouffée, nous avons proposé au chapitre 3, une modélisation simplifiée qui décrit le relâchement des gaz au sein de l'échantillon combustible pendant un palier isotherme comme l'écoulement d'un réservoir de gaz surpressurisé à travers un milieu poreux vers les surfaces libres du combustible. Ce modèle, baptisé « modèle d'écoulement vidange », permet de reproduire la cinétique décroissante du relâchement observé au cours d'un palier isotherme en traitement thermique. Il s'inscrit en cohérence avec une approche mécanique liée à la décohésion des joints de grains (mécanisme de premier ordre actuellement pour les travaux de modélisation). Il nous permet également d'évaluer des grandeurs physiques caractéristiques de l'écoulement à l'instar de la pression du réservoir de gaz associé à chaque bouffée, le volume disponible pour le relâchement des gaz de fission ainsi qu'une caractérisation de la perméabilité du combustible en fonction de la température.

Au chapitre 4, nous avons pu tester la validité du modèle sur les données expérimentales. Nous avons établi une analyse pour chaque bouffée :

En ce qui concerne B3, nous avons démontré que le modèle d'écoulement vidange sied à interpréter son relâchement. Nous avons déterminé que le réservoir associé au relâchement de B3 était cohérent avec le relâchement des bulles du RIM. Ces résultats

sont cohérents avec une interprétation du relâchement de B3 par le mécanisme de décohésion des joints de grains. Nous avons également pu évaluer une valeur de perméabilité des chemins empruntés par les gaz lors de la vidange de B3, ce qui nous permet d'obtenir un ordre de grandeur de la taille de ces chemins. Les résultats du modèle indiquent des diamètres de chemin très faibles, et vraisemblablement difficiles à observer expérimentalement.

Ces résultats permettent de conforter la modélisation numérique du relâchement de cette bouffée mise en œuvre au CEA et de fournir des valeurs expérimentales pour sa validation. De ce point de vue, il serait intéressant de systématiser les paliers isothermes maintenus dans le protocole des traitements thermiques afin d'augmenter la base de données de perméabilité pour lesquelles il existe aujourd'hui très peu de données.

La première bouffée (B1) adopte également un comportement cinétique proche de celui décrit par le modèle, sans qu'il soit possible d'identifier un réservoir de gaz connu et cohérent avec les valeurs de pression et de volume obtenu. L'hypothèse la plus raisonnable pour expliquer son origine serait de considérer qu'il s'agit d'un relâchement lié aux modalités de préparation de l'échantillon. La découpe de l'échantillon pourrait être à l'origine de l'ouverture partielle de porosité contenant du gaz. Cette hypothèse est cohérente avec l'observation d'un faible relâchement à froid. Dans cette logique, B1 pourrait être un reliquat de ce relâchement à froid qui se manifeste dès l'application d'une faible charge thermique.

Notre analyse de B1 nous pousse à recommander de ne pas prendre en compte le relâchement à 300°C dans un scénario de transitoire thermique accidentel, car en situation réelle le crayon n'aura pas été découpé, sans pour autant négliger son inventaire qui existe par ailleurs et est donc susceptible de relâcher à plus haute température.

Finalement, B2 est la seule des trois bouffées de relâchement à ne pas pouvoir être décrite par le modèle d'écoulement vidange. Sa décroissance est très rapide en palier isotherme, si bien que le modèle d'écoulement vidange ne pourrait approcher sa cinétique qu'en modélisant une grande perméabilité (des chemins bien plus larges que pour B3) et/ou une pression de réservoir très importante (bien plus que pour B3) alors même cette bouffée débute vers 500°C. Un tel réservoir impliquerait des pressions à température ambiante très supérieure à ce que nous savons de la littérature.

Ces résultats nous amènent à la nécessité de considérer un autre mécanisme de relâchement pour B2 que la seule fracturation des joints, comme cela a été fait jusqu'à présent. Ce point est la perspective majeure apportée par ce travail. Les résultats obtenus dans cette thèse et dans la littérature nous amènent à envisager un moteur thermo-chimique de B2 comme cela est développé dans le chapitre perspectives.

6. PERSPECTIVE POUR LA DEUXIEME BOUFFEE DE RELACHEMENT

6.1 DISCUSSION SUR L'APPORT DES RESULTATS DE MEXIICO DANS L'INTERPRETATION DE B2

Il existe au sein du Laboratoire d'Analyse de la Migration des Radioéléments une autre installation expérimentale similaire à MERARG. Un four instrumenté nommé MEXIICO [95] qui permet d'imposer en plus d'un transitoire thermique, une contrainte en pression autour de l'échantillon pendant le TT. Cette pression peut être constante ou variable tout au long du traitement thermique. La base de données de MEXIICO est moins abondante que MERARG, et l'un des principaux résultats apportés à ce jour par l'installation a été évoqué dans la partie bibliographique : en présence d'une contrainte hydrostatique importante autour de l'échantillon combustible en TT, le relâchement des gaz est plus faible. Nous voulons dans cette partie perspective, mettre en exergue quatre traitements thermiques sur deux types d'échantillons combustibles similaires. Il s'agit d'un couple de deux traitements thermiques dans MERARG, et de deux autres dans MEXIICO, l'un avec un échantillon UO_2 homogène à $100 GW_j/t_U$ (donc constitué exclusivement d'HBS) l'autre d'un échantillon UO_2 homogène à $76 GW_j/t_U$.

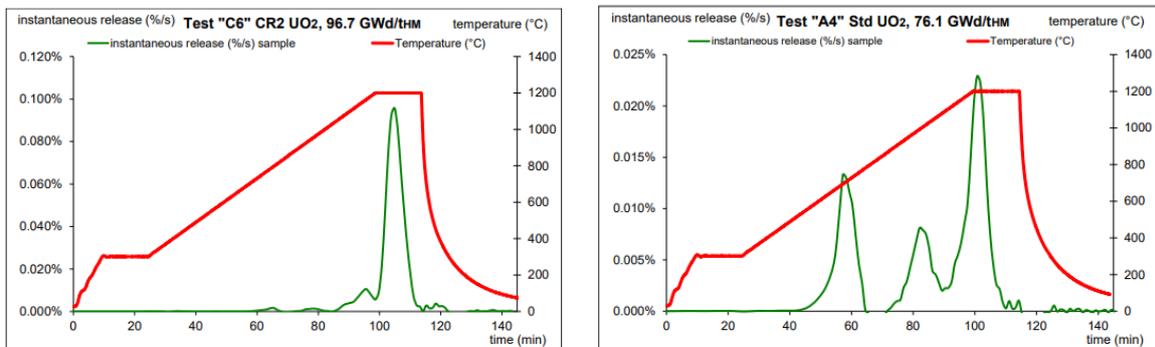


FIGURE 6.1-1 CINETIQUE DE RELACHEMENT DE COMBUSTIBLE UO_2 HOMOGENE DANS MERARG, RESPECTIVEMENT A $96,7 GW_j/t_U$ (GAUCHE) ET $76,1 GW_j/t_U$ (DROITE).

C'est notamment sur la base des résultats de ces deux traitements thermiques dans MERARG (Figure 6.1-1) que nous nous appuyons pour justifier l'hypothèse que le gaz relâché pendant B3 provient principalement du RIM (1.5.1). En effet, dans le cas de l'échantillon homogène à $100 GW_j/t_U$, l'échantillon n'est composé que d'HBS, et B3 est la seule bouffée à relâcher de manière significative. À l'inverse, un échantillon qui n'est

pas encore totalement composé d'HBS relâche plusieurs bouffées. Nous allons analyser des TT dans MEXIICO sur des échantillons similaires avec le protocole en pression suivant (Figure 6.1-2) :

- Un palier isobare à 600 bars pendant la rampe de température
- Une décroissance linéaire de la pression pendant le palier isotherme à 1200°C jusqu'à la pression atmosphérique.

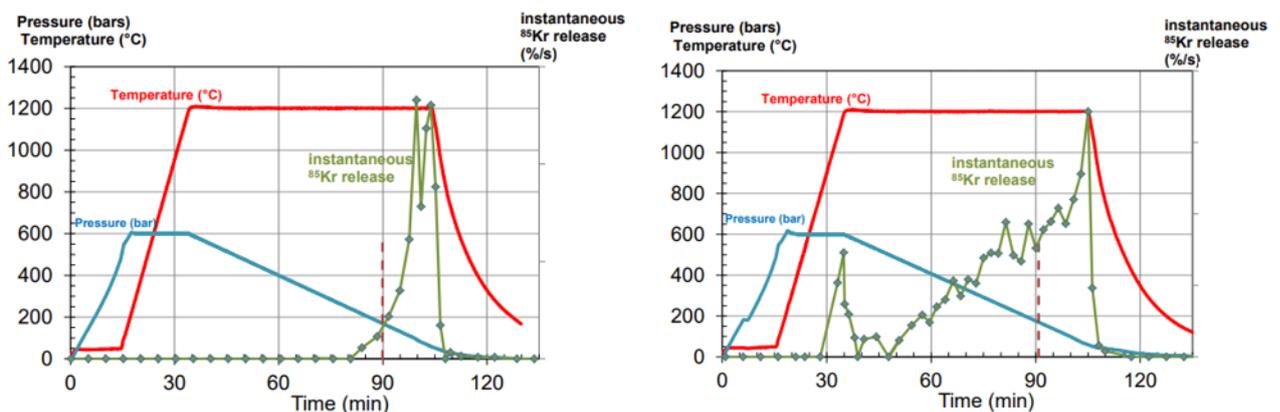


FIGURE 6.1-2 CINETIQUE DE RELACHEMENT DE COMBUSTIBLE UO_2 HOMOGENE DANS MEXIICO, RESPECTIVEMENT A $96,7 \text{ GW}_j/t_U$ (GAUCHE) ET $76,1 \text{ GW}_j/t_U$ (DROITE).

S'agissant du traitement thermique sur l'échantillon composé exclusivement d'HBS, le relâchement ne se produit que lorsque la pression est inférieure à 300 bars, avant celui-ci le relâchement est nul. C'est une valeur de pression cohérente avec celle déterminée par le modèle dans le réservoir de gaz disponible de B3, au chapitre précédent. S'agissant du traitement sur l'échantillon à $76 \text{ GW}_j/t_U$, on distinguera deux types de relâchement : un premier pendant le palier isobare et pendant la rampe de température aux alentours de 600°C , qui décroît très rapidement à la fin du palier isobare et du début du palier isotherme (B2 ?). Puis un relâchement lentement croissant dès que la pression chute vers 500 bars (B3 ?). La présence dans le second traitement thermique, d'un relâchement alors que la pression autour de l'échantillon est de 600 bars, impliquerait dans une logique de relâchement de réservoir de gaz surpressurisé que la pression du réservoir associé soit supérieure à 600 bars vers 600°C . On peut poser l'hypothèse que le premier relâchement correspond essentiellement à B2 et le deuxième type de relâchement correspond essentiellement à B3. Le moteur de la première partie de relâchement ne semble pas être affecté par la pression hydrostatique imposée sur l'échantillon. Cette observation conforte l'idée que les mécanismes à l'œuvre pour la deuxième bouffée sont de nature différente que pour les autres bouffées de relâchement. On peut ainsi affirmer que le relâchement associé à B2 dans la figure 6.1-2 (droite) ne semble pas être cohérent avec l'ouverture d'un réservoir surpressurisé.

6.2 ANALYSE DES IMAGES ENREGISTREES PENDANT LE TRAITEMENT THERMIQUE 78

Le traitement thermique 78, réalisé au cours de la thèse pour analyser la vidange de B2, a été l'occasion de mettre en œuvre un nouveau dispositif instrumental dans MERARG, présenté dans le chapitre 1 : la « visu » fragmentation. Une caméra permet d'imager et d'enregistrer l'évolution de la partie supérieure de l'échantillon pendant le traitement thermique. La Figure 6.2-1 reprend quatre clichés issus de cette vidéo à quatre moments du TT :

- À température ambiante en début de TT
- Pendant la rampe à 750°C
- Pendant le palier à 750°C
- Pendant la chute de température en fin de TT

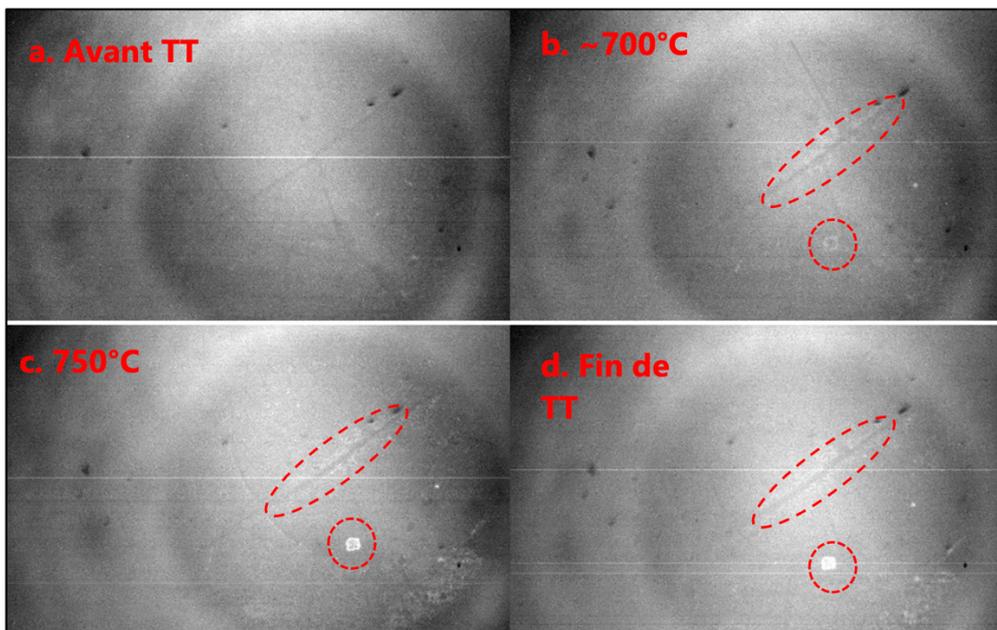


FIGURE 6.2-1 ÉVOLUTION VISUELLE DE LA SURFACE DE L'ÉCHANTILLON AU COURS DU TT 78

En dehors de quelques éléments parasites sur les clichés, on distingue à travers l'ouverture circulaire du couvercle du creuset (4 mm), une grande partie de la surface de l'échantillon combustible avec son réseau de fissures dû à son irradiation passée. On notera l'apparition de « précipités blancs » sur l'échantillon pendant et après le relâchement de B2. Une tâche principale se distingue dans la partie inférieure de l'image, mais également une multitude de taches blanches plus petites autour des fissures et près de la périphérie de l'échantillon que l'on peut apercevoir en bas à droite des clichés c et d. La formation de ces précipités peuvent être corrélés au moment de

relâchement de B2 d'après la vidéo issue de la visu fragmentation. Peu de temps après le traitement thermique ces taches blanches ont disparu et n'ont pas pu être analysées. L'observation de taches blanches sur l'échantillon combustible pendant le traitement thermique pourrait indiquer le relâchement d'autres éléments, éventuellement d'autres produits de fission. Les mécanismes à l'œuvre ici pourraient être un changement de phase d'un produit de fission provoquant son relâchement, à l'instar d'une phase fusible au joint de grain ou d'un mécanisme de ressuage. On peut poser l'hypothèse que dans sa mobilité vers les surfaces libres, ces produits de fission entraînent dans leur sillage du gaz de fission (ou l'inverse ?). Ainsi, un mécanisme thermochimique pourrait participer au relâchement de la deuxième bouffée et apporter des explications sur pourquoi ce relâchement ne vidange pas comme les autres bouffées de relâchement et pourquoi cette bouffée semble, au moins en partie, se relâcher indépendamment de la pression exercée autour de l'échantillon. En guise d'exemple, le CsI atteint sa température de fusion vers 621°C. Il s'agit là d'une piste de recherche intéressante à explorer dans de futurs travaux.

Dans ce sens, des traitements thermiques visant à suivre le relâchement des PF volatiles et gazeux en cellule de Knudsen, ont été réalisés au DPC [111] [112], sur des échantillons implantés en produit de fission volatile à différentes densités d'implantation. Les résultats des essais de relâchement sont présentés dans les Figure 6.2-2 et Figure 6.2-3.

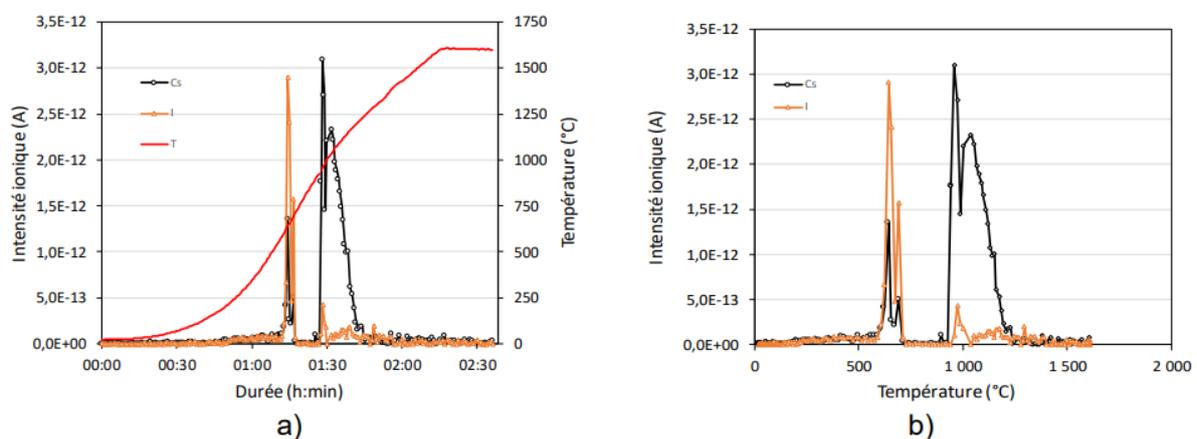


FIGURE 6.2-2 ÉVOLUTION DE L'INTENSITE RELACHEE DE CESIUM ET D'IODE (Cs : $2,5 \times 10^{16}$ AT/CM² ET I : $1,3 \times 10^{16}$ AT/CM²) POUR UNE VITESSE DE CHAUFFAGE DE 10°C/MIN A) EN FONCTION DE LA DUREE ET B) EN FONCTION DE LA TEMPERATURE

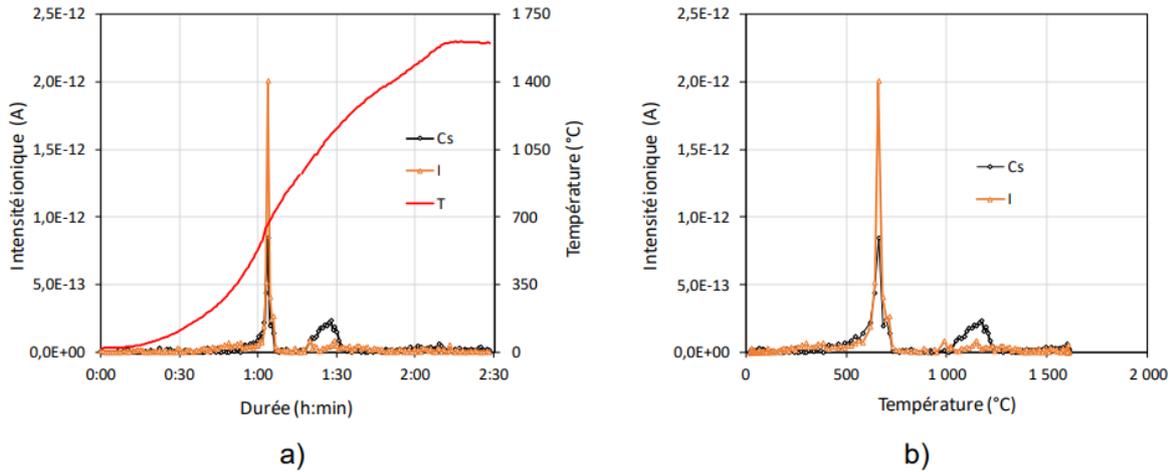


FIGURE 6.2-3 ÉVOLUTION DE L'INTENSITE RELACHEE DE CESIUM ET D'IODE (Cs : $1,3 \times 10^{16}$ AT/CM² ET I : 6×10^{15} AT/CM²) POUR UNE VITESSE DE CHAUFFAGE DE 10°C/MIN A) EN FONCTION DE LA DUREE ET B) EN FONCTION DE LA TEMPERATURE.

Cette série d'essais montre que le césium et l'iode relâchement sous forme d'une bouffée sans vidange dans un intervalle de température similaire au 85Kr pour B2. Ces résultats sont cohérents avec l'hypothèse d'un mécanisme thermo-chimique associé entre le relâchement de B2 et le relâchement de PF volatile entre 400 et 800°C.

Pour conclure sur B2, nous pensons que les éléments présentés dans cette partie perspective encouragent vivement à explorer la piste d'un nouveau mécanisme, prenant son origine dans la thermo-chimie du combustible, pour expliquer l'origine du relâchement de la deuxième bouffée.

ANNEXE 1 : UNE NOUVELLE METHODE DE DECONVOLUTION PAR « FORWARD FITTING » POUR ANALYSER LES RELACHEMENTS DE GAZ DE FISSION

J. Losfeld, L. Desgranges, S. Clement, Y. Pontillon *CEA, DES, IRESNE, DEC/SA3E/LAMIR¹*

Abstract MERARG experimental facility in LECA-STAR Laboratory at the CEA Cadarache center allows characterizing nuclear fuels with respect to the behavior of fission gases during thermal transients. In MERARG, F.G.R. (Fission Gas Release) measurement is carried out remotely from the sample where the release occurs, in a dedicated counting chamber located outside the hot cell itself. It is therefore necessary to deconvolve the acquired experimental data in order to infer the release kinetics at the sample position. An analytical deconvolution method allows us to determine, from the experimental data, the kinetics of the F.G.R. at the sample level located in the MERARG furnace with in some few cases a margin of error. It is established that the F.G.R. take the form of successive bursts depending, in part, upon temperature and characteristics of the fuel sample. For the better understanding of the mechanisms at the origin of the characteristic kinetics of F.G.R., this paper aims to expose a new mathematical method for re-processing the experimental data obtained using a forward fitting approach, allowing us to overcome the difficulties encountered with the analytical method. This forward fitting approach poses the question of the nature of the mechanisms underlying F.G.R. as an inverse problem. By making assumptions about these mechanisms, the forward fitting method allows the F.G.R. interpretation by comparing them to analytically deconvoluted F.G.R. signals. This method provides a different way to analyse the annealing test data making it possible to describe physical phenomena directly related to the gas release from the samples such as the sudden release occurring at different temperatures.

Index Terms Instrumentation and measurement, Nuclear measurements, Materials science and technology, Nuclear fuels;

I. INTRODUCTION

The release of fission gases (F.G.R.) is a key parameter in the behaviour of nuclear fuel in PWR [1] during both base irradiation and off normal conditions such as RIA (Reactivity Initiated Accident) or LOCA (LOss of Coolant Accident) type accidents. In order to study F.G. behaviours during these events, the Fuel Studies Department at CEA Cadarache carries out annealing tests on irradiated fuels thanks to the MERARG experimental facility. The measurement of F.G.R. during the tests is performed remotely in a dedicated counting chamber (see hereafter) sighting by a gamma spectrometry station. In order to interpret the measurements it is therefore necessary to deconvolve the acquired signal in order to reconstruct the release kinetics at the sample location. So far, a previous deconvolution method [2], performing an analytical deconvolution, worked well for most experiments but produced, in very few cases, some instabilities such as negative values for the release over some short time intervals or noise leading to some difficulties for the interpretations.

This paper presents a new way for F.G.R. analysis, which avoids these drawbacks. This method provides a different approach and a complementary modelling to the analytical deconvolution. In this paper, we will first detail the experimental context and the analytical deconvolution method, before discussing the transfer function of the system. Then, we will explain the forward fitting tool and what we can learn from this new method.

A. MERARG facility

The architecture of the annealing test facility, called

1. MERARG is located in one of the hot cell of the LECA-STAR laboratory at the CEA Cadarache centre. Since the detail of this experimental set-up was already described in other publications [3a; 3b], only the key points will be recalled here. MERARG consists of three main elements: 1- an induction furnace, 2- a gamma-ray spectrometry detector, 3- a glove box containing a gas micro (GC) and storage capacities. The furnace is located in a high activity cell whereas the gamma detector and GC are both located in the back area of the hot cell. The characterized fuel pellet (usually with its cladding) is introduced into a metal crucible. The sealed furnace enclosure is swept by a slowly flowing carrier gas (approximately 60 cm³/min of argon or dry air). As the temperature rises, the gas released is directed towards the back zone in the gamma spectrometry station measuring on-line the radiological activity. After this on-line gamma station, the gases reach a glove box where they are analysed by μ -GC and finally disposed in storage tanks. A typical annealing test consists of a preliminary heating at 300°C followed by a linear temperature increase up to 1200°C (with a ramp from 0.1°C/s to 20°C/s). In the following, we will only discuss the signal of ⁸⁵Kr measured by gamma spectrometry.

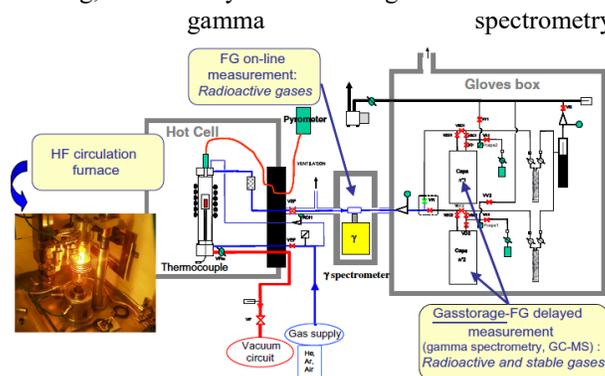


Fig. 1. MERARG test facility

¹ Cadarache F-13108 Saint-Paul-Lez-Durance, France

B. Analytical deconvolution

In MERARG, the ^{85}Kr measurement is performed at a distance of several metres from the sample where the release occurs, by a dedicated counting chamber located outside the hot cell. The ^{85}Kr atoms released from the sample undergo a dilution with the sweeping gas in the furnace before reaching the counting chamber where further dilution occurs (Fig. 2.). The ^{85}Kr released from sample signal (in atoms/g/s) is then convolved with a transfer function that accounts these dilution and transport events. It is therefore necessary to unfold the acquired experimental data in order to reconstruct the release rate data at the sample position.

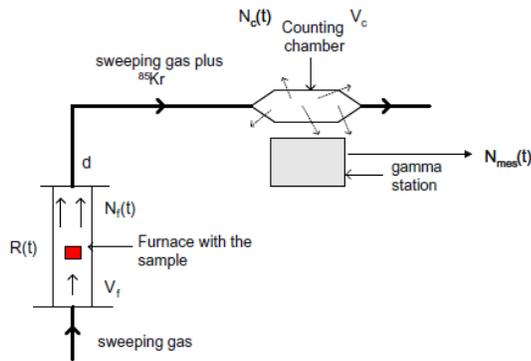


Fig. 2. Schematics of the F.G.R. path in MERARG

As demonstrated in a previous paper [1], the general F.G.R. process can be schematized as shown in Fig 2. $R(t)$ and $N_c(t)$ are, respectively, the F.G.R. at the sample position and the number of ^{85}Kr atoms in the counting chamber at time t . V_f and V_c are, respectively, the volume of the furnace and the counting chamber, while d expresses the gas flow rate (considered constant). By performing the atomic balance, it is possible to express $R(t)$ as a function of $N_c(t)$:

$$\text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \quad (1)$$

II. RESULTS AND LIMITATIONS OF THE ANALYTICAL METHOD

Figure 3 shows an example of ^{85}Kr release kinetics in the counting chamber (top) and the corresponding analytical deconvolution of the same release (down) reconstructed at the sample level following the analytical deconvolution of the measured data according to equation (1). Significant noise effects and negative values can affect the analytically deconvolved curve, preventing the quantitative interpretation. It affects 5 to 10% of the annealing carried out in MERARG, as it can be seen at the bottom of Figure 3. In order to avoid a noisy and unusable deconvolution result, it is possible to proceed to the filtering of the experimental data. There will always be a major uncertainty in this case: does the presence of multitude of small peaks reflects the mechanism behind the ^{85}Kr release or is it a consequence of measurement noise or poor filtering of the measured data in the counting chamber?

A release in the form of a sum of pulses could reflect, for example, a cascade of grain boundary rupture in the ceramic during the thermal transient. Considering the transit time in the MERARG loop, would such a behaviour be visible in the counting chamber measurement? It should be added that our hypothesis of considering the flow rate as constant throughout the annealing process is a good approximation except for the time interval corresponding to the sudden drop in temperature at the end of the 1200°C plateau. Indeed, this temperature decrease introduces a variation of the pressure and consequently of the flow rate, resulting in the recurrent appearance of small negative values during the few minutes considered in the analytical deconvolution. The experimental flow values are not reliable enough to be integrated into the analytical deconvolution calculation, so it is important to consider these drawbacks.

It is with the aim of answering these questions and overcoming the drawbacks of analytical deconvolution that the forward fitting method was designed. The objective is to provide a simulation of the behaviour of the F.G.R. (at the sample level) as a function of the mechanisms considered, and to compare the results of this modelling with the analytical deconvolution to identify the mechanisms most likely to justify the behaviour of the F.G.R..

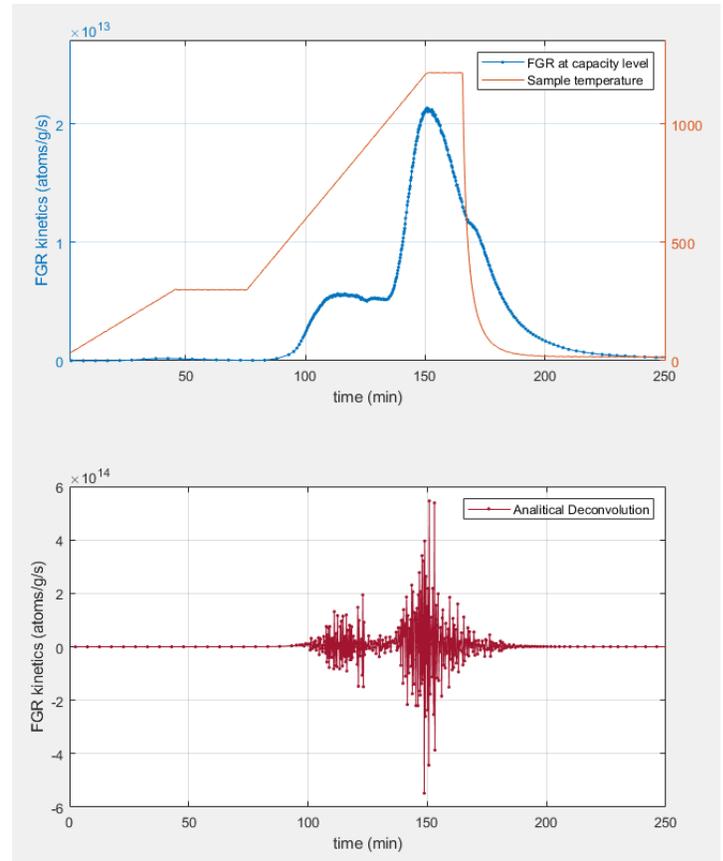


Fig. 3. ^{85}Kr release kinetics in the counting chamber (up) and analytical deconvolution of the same release at the sample level (down).

This new method requires the knowledge of the transfer function of ^{85}Kr detection system, which is described in the following section.

III. TRANSFER FUNCTION

A. Definition

This transfer function (TF) takes into account the spreading of the F.G.R. signal at the sample level, during its transfer across the MERARG experimental path, between the furnace and the counting chamber where the release is measured.

The problem can be summarised by the following convolution equation:

$$I(t) = R(t) * TF \quad (2)$$

Where $I(t)$ and $R(t)$ are, respectively, the number of ^{85}Kr atoms in the counting chamber at time t and the F.G.R. measured at the sample level convolution operator.

According to the expression (2) and the Laplace transform, we have:

(3)

Based on the analytical deconvolution method (1), we have:

(4)

Then

(5)

By identification according to (3):

(6)

Therefore, the transfer function can be written as follows [4]:

(7)

B. Transfer function confirmation

To experimentally confirm the reliability of the transfer function as defined in (7), a heat treatment was performed on a vial filled with a calibrated volume of ^{85}Kr . Under the effect of the thermal transient the vial instantly releases its content, leading to a spike distribution. Assuming that this particular "Sample" function corresponds to a Dirac distribution, this simplifies the equation (2) as follows:

(8)

(9)

It is possible to simulate the gas release from the vial by a function defined by expression (7), with a good fit as displayed in Fig 4. The blue dotted curve show the release of ^{85}Kr from the vial during the heat treatment in MERARG and the fit curve is correspond to the transfer function.

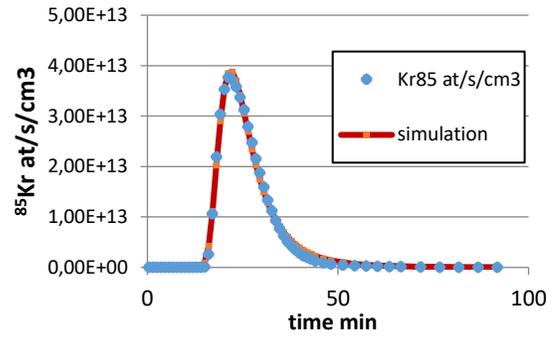


Fig. 4. Measurement of the ^{85}Kr vial release (blue points) and simulation of the measured curve by a function similar to $TF(t)$

IV. A MORE NUMERICALLY STABLE METHOD

With the known transfer function, it is possible to reformulate the problem of determining the F.G.R. at the sample level as an inverse problem.

The objective here is to reconstruct the ^{85}Kr release curve, at the sample level, by defining a relevant function to simulate its behaviour and its underlying mechanisms. Thus modelling, relying on convolution, fitting and then deconvolution of the modelled data, it will be possible to reconstruct the investigated F.G.R. with the considered mechanism.

A. Example of function choice for the F.G.R. simulation at the sample level

We choose as a simple example, a function as presented in fig. 5. This function consists in a rectangular function followed by a decreasing exponential, which we will call RDE function (for Rectangular Decreasing Exponential). The mechanism considered here corresponds to a mechanical opening of the reservoirs containing the ^{85}Kr (Instantaneous Release) followed by the emptying of the reservoir according to a decreasing exponential curve.

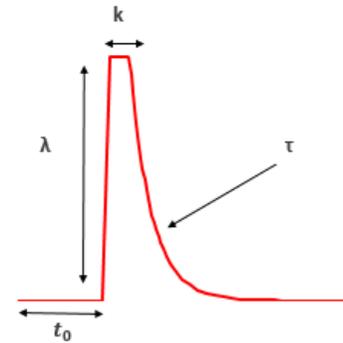


Fig. 5. RDE function

This assumption therefore implies that each burst observed in the MERARG F.G.R. measurement takes the characteristic form of this RDE function. In the presence of several bursts, as observed experimentally, the F.G.R. function (at the sample level) is therefore equal to the sum of RDE functions.

B. Curve fitting and deconvolution

Considering F.G.R. bursts as a sum of RED functions, we can therefore rewrite our convolution equation (2) as follows:

(10)

Thus, we know the measured function, the transfer function (part 3 of the article) and the sample function as defined in the previous paragraph. Therefore, as detailed in figure 6, in order to solve this inverse problem and find the F.G.R. at the sample level, the following methodology should be applied for each annealing test:

1. From an experimentally measured F.G.R. curve in the counting chamber, the relevant number of bursts is defined and an approximate F.G.R. function is constructed. In this example, we identify at least four successive bursts. We therefore construct four RDE functions (red), with approximate parameters.
2. The previously approximate function is convolved with the transfer function, to obtain an approximate "Measured" function.
3. The simulated curve is fitted to the experimentally measured curve, by adjusting the parameters of the RDE functions before convolution with the transfer function.
4. The simulated measured function is then deconvolved and the target F.G.R. curve is obtained.

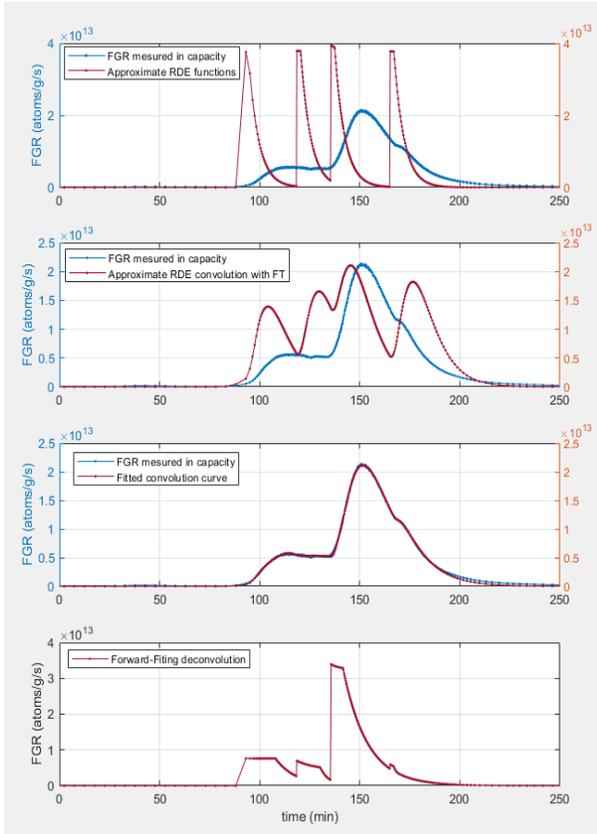


Fig. 6. Illustration of the fitting deconvolution process

V. DISCUSSION

A. F.G.R. modelling and fitting quality

The choice of the appropriate function to express the underlying mechanisms of the F.G.R. is a key parameter. This choice will lead to a certain quality in the fitting process, which will be one of the criteria to evaluate the relevance of this choice of modelling. Figure 7. represents the fit of the example from the previous section and its residuals. As a first approximation, the RDE function is interesting. The fit is globally good, but its residuals indicate that we have lost information from the experimental curve. This means that the modelling function (RDE) is probably not the most optimal one and that it is perhaps necessary to add more bursts.

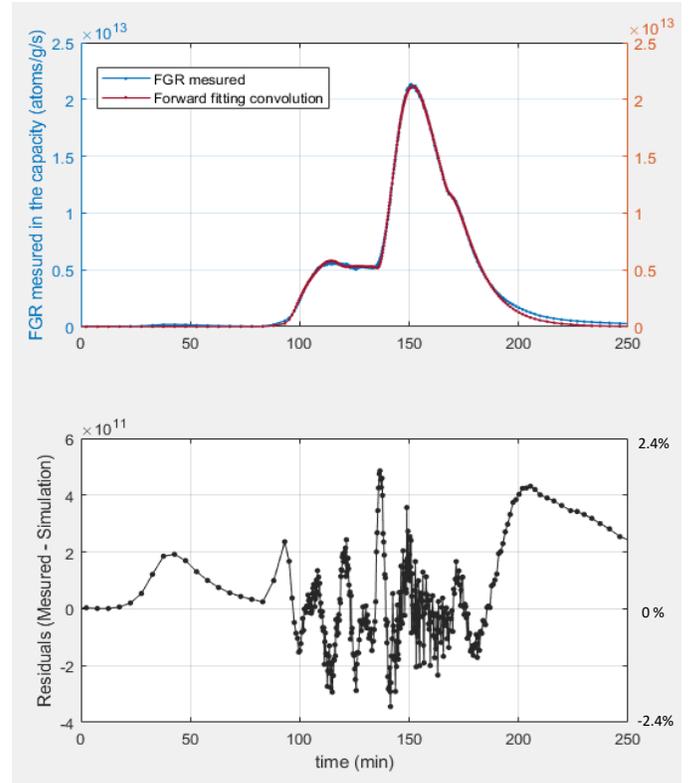


Fig. 7. Forward fitting methods fitting residuals

We can draw two conclusions from the shape of the residuals:

1. There is a small burst before the 50th minute. Its intensity is of the same order of magnitude as the rest of the residue, so it is difficult to add it. It will be neglected in this example.

2. The decreasing exponential of the RDE function does not fit well on the end of the release. This means that this function poorly describes the physical phenomena that cause this drop-off. This information is crucial to characterise the origin of a burst and the underlying mechanisms. It highlights one of the contributions of the forward fitting method.

The noisy example 8.(a), shows the major interest of the forward fitting method for noisy F.G.R. In these cases, this method can be used to determine the number of bursts, their intensity, and their respective inventories, thus overcoming all the limitations of the analytical method.

The partially noisy example 8.(b), not only mitigates the noise fringe at the 60th minute, but also overcomes the negative release at the end of the last burst.

The examples (b) and (c), which are much less noisy than (a), demonstrate the consistency of the two methods which together give relatively similar burst descriptions. These two examples nevertheless point out the limits of modelling bursts by RDE functions. It is apparent that the rising part of the releases is not instantaneous, but actually more progressive. This is particularly noticeable for the first puff at the 50th minute. The descending part of the last burst in example (c) also points to the limits of the descending exponential to describe this part of the release.

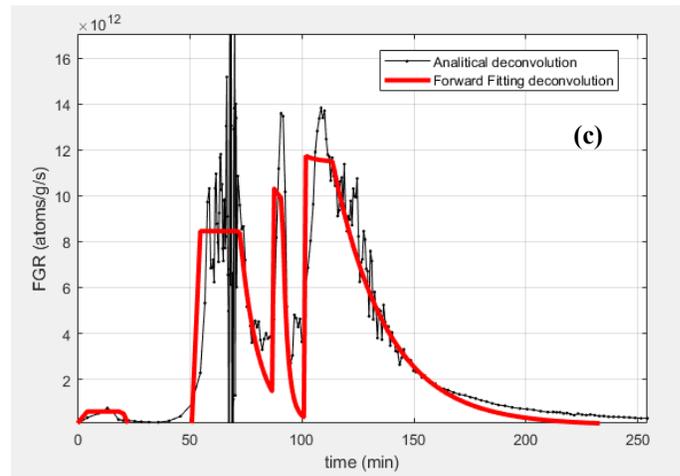


Fig. 8. Example of both methods on irradiated sample annealing on a noisy case (a), a partly noisy case (b), and a low noise case (c).

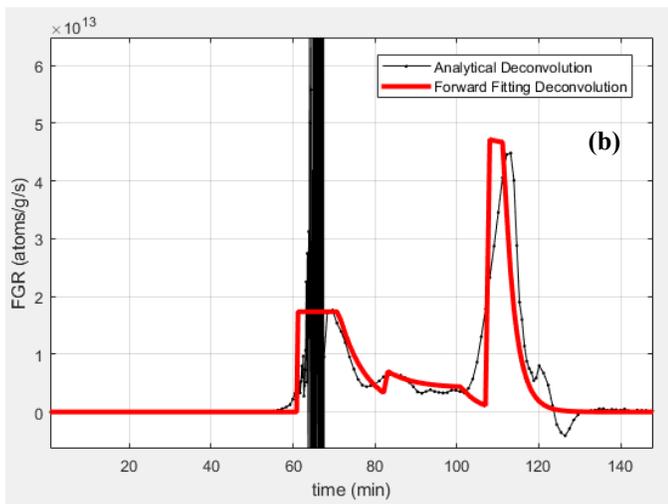
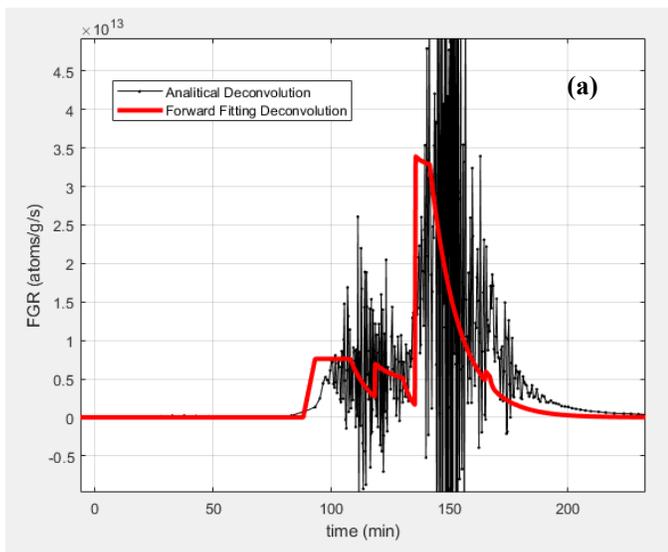
B. Complementarity of the two methods

The two approaches presented in this paper to determine the release kinetics at the sample level during annealing are complementary.

Firstly, analytical deconvolution allows to stay as close as possible to the original data. The description of the release kinetics is therefore a priori more reliable, but there are uncertainties linked to the on-line measurement of the fission gas which modifies or even add noise in the signal. Furthermore, the analytical deconvolution equation is based on the assumption of a constant flow rate throughout the annealing process. However, the temperature change foreseen in the experimental protocol induces a modification of the flow rate which can, in certain cases, impact the deconvolution. This is particularly the case for sudden temperature changes at the end of the high temperature stage, which can lead to brief negative release.

The forward fitting method makes it possible to overcome a large part of the uncertainties of the analytical deconvolution. Experimental noise is no longer a problem, and the release cannot be negative. The robustness of this method lies in our ability to correctly simulate the behaviour of a burst. For this purpose, we have worked on the RDE function as a starting hypothesis, but it appears from our recent results that this function can be improved. It is possible to benefit from the most reliable (and therefore least noisy) analytical deconvolution releases to identify the most suitable shapes and functions to describe the behaviour of a burst.

To do this, it is necessary to carry out function fit tests on these cases of unbiased analytical deconvolutions in order to determine the most relevant functions to describe a burst. These functions must have a physical basis in order to help us determine the mechanisms behind the releases. In this perspective, we are working on functions from the diffusion equation or Darcy's law to perform these fits. These are the most promising areas for improvement of the method.



VI. CONCLUSION

We have seen in this paper that there are two methods to analyse the gaseous releases of ^{85}Kr during annealing in the MERARG furnace. Analytical deconvolution is relevant for most of the experiments carried out and has the advantage of being as close as possible to the experimental data. However, measurement noise and experimental uncertainties affect the quality of the information that this method provides on the F.G.R. The forward fitting method was designed to overcome this problem. It is based on our ability to model a burst of gas release from the best results of the analytical method, to facilitate the analysis of the noisiest results. The forward fitting method reformulates the problem of reconstructing the release at the sample level by considering it as an inverse problem. Thus constructed, the fitting method can process the signal, avoiding the problem of negative F.G.R. values and the numerical instabilities observed in some case using the analytical deconvolution method. The accuracy of this method to describe the release kinetics during a temperature transient can be further improved, by choosing a more relevant reference function to characterise the burst. By modelling the release in this way, we can more accurately estimate the amount of gas released for each burst. In addition, the mathematical form of the reference function that will be chosen to model a release will allow us, through the accuracy of the fit, to evaluate the relevance of an underlying mechanism. For example, considering that the emptying of a burst is similar to the release of a gas in a porous medium, it will be possible to implement Darcy's law in the reference function to confront this hypothesis with experimental results. The quality of the fit, the analysis of fit residues and the coherence with the shape of the analytically deconvoluted release will confirm or invalidate this hypothesis.

Thus, the two methods provide different and complementary information on the releases in MERARG furnace. By studying the two methods in parallel, the outlook is to identify the mechanisms at the origin of the release and to a better understanding of the paths taken by the gas to escape from the fuel and the origin of their opening.

REFERENCES

- [1] J. Rest, M.W.D. Cooper, J. Spino, J.A. Turnbull, P. Van Uffelen, in *JNM*, August 2018.
- [2] P. Menegon, L. Desgranges, Y. Pontillon, A. Poulesquen, in *JNM*, April 2018.
- [3]
 - a. E. Guigues, A. Janulyte, Y. Zerega, Y. Pontillon, J. -Line Mass Spectrometry Measurement of in *ANIMMA*, Jun 2013.
 - b. Y. Pontillon et al., in *2005 Water Reactor Fuel Performance Meeting*, October 2005, Kyoto, Japan.
- [4] H. S. John W. Harris, *Handbook of Mathematics and Computational Science* ISBN 0-387-94746-9, Springer, 1998.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] IPCC, "AR6 Synthesis Report: Climate Change" 2023.
- [2] Ministère de la transition énergétique, "Stratégie Nationale Bas-Carbone - La transition écologique et solidaire vers la neutralité carbone", Mars 2020.
- [3] Henri Becquerel, *Comptes-rendus de l'Académie des sciences, séance du 24 février 1896*, «Sur les radiations émises par phosphorescence», pp. 420-421 & *séance du 1er mars 1896* «Sur les radiations invisibles émises par les corps phosphorescents», pp.501-502, 1896.
- [4] M. Sklodowska Curie, *manuscrit de thèse "Recherches sur les substances radioactives"*, Faculté des sciences de Paris, 1903.
- [5] P. Curie et M. S. Curie, "Comptes rendus à l'Académie des sciences", Paris, 18 juillet 1898.
- [6] The Nobel Prize in Physics 1903. Nobel Prize Outreach AB 2023. Mon. 17 Jul 2023. <<https://www.nobelprize.org/prizes/physics/1903/summary/>>.
- [7] T.J. Trenn, "Rutherford on the Alpha-Beta-Gamma Classification of Radioactive Rays". Vol. 67 (1): pp 61–75, 1976.
- [8] J. Chadwick, "Possible Existence of a Neutron" Nature 129, 1932.
- [9] I. Curie et F. Joliot, "Électrons de matérialisation et de transmutation", J. Phys. Radium, no 4.8, 1933.
- [10] O. Hahn and F. Strassmann, "Sur la détection et les caractéristiques des métaux alcalino-terreux formés par irradiation de l'uranium avec des neutrons", Naturwissenschaften Volume 27, 1938.
- [11] E. Fermi, "Radioattività indotta da bombardamento di neutroni", La Ricerca Scientifica, 1934.
- [12] C. Salvetti, "The Birth of Nuclear Energy: Fermi's Pile" dans l'ouvrage "Enrico Fermi: His Work and Legacy", Springer. pp. 177–203, 2001.
- [13] Ordonnance n° 45-2563 du 18 octobre 1945 instituant un Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives.
- [14] "Voici ZOE, La pile de Chatillon", BNF, les Lettres françaises, 1948.
- [15] "décision interministérielle du 13 novembre 1969", Compte rendu integral des séances - JO n°100, 27 Décembre 1969.
- [16] G. Vendryes, "Superphénix, Pourquoi ?", Nucléon, 1997.
- [17] H. Bailly, D. Ménessier, et C. Prunier, "Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides - conception et comportement", Eyrolles. 1996.
- [18] B. Bonin, "Les réacteurs nucléaires à caloporteur sodium", Monographie CEA, 2014.

- [19] D. D. Eisenhower, "Atoms for peace speech, President of the United States of America, to the 470th Plenary Meeting of the United Nations General Assembly", 1953.
- [20] "WASH-740, *Theoretical Possibilities and Consequences of Major Accidents in Large Nuclear Power Plants*", US Atomic Energy Commission, 1957.
- [21] "WASH-1400, *The Reactor Safety Study*", US Nuclear Regulatory Commission, 1975.
- [22] "Échelle internationale des événements nucléaires et radiologiques (INES)", Agence Internationale de l'Energie Atomique.
- [23] "Accident à la centrale nucléaire de Three Mile Island (Etats-Unis) en 1979, Le déroulement de l'accident", Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, dossier, 2012.
- [24] "Fuel Behavior under abnormal conditions", US Nuclear Regulatory Commission, NUREG/KM-0004, 2009.
- [25] "Appendix K to Part 50.46—ECCS Evaluation Models", US Nuclear Regulatory Commission, 1954.
- [26] "Orientations pour l'évolution du référentiel d'étude de l'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP)", Autorité de Sûreté Nucléaire, CODEP-DCN-2011-013376, 2011.
- [27] "Conception des réacteurs à eau sous pression", Autorité de Sûreté Nucléaire, guide n°22, version de 18/07/2017.
- [28] "Savoir et comprendre - Les accidents", Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, dossier en ligne <<https://www.irsn.fr/savoir-comprendre/surete/accidents>>.
- [29] H. Grard, "Physique, fonctionnement et sûreté des REP", INSTN - edp sciences, 2014.
- [30] B. Bonin, "Monographie CEA/DEN - Les réacteurs nucléaires expérimentaux", p115-126, 2012.
- [31] "Les grands principes de la sûreté nucléaire", Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, dossier en ligne <<https://www.irsn.fr/savoir-comprendre/surete/grands-principes-surete-nucleaire>>, 2013.
- [32] E. H. Karb, M. Pruessmann, L. Sepold, P. Hofmann, and G. Schanz, "LWR fuel rod behavior in the FR2 in-pile tests simulating the heatup phase of a LOCA. Final report," 1983.
- [33] T.M. Broughton, K. Vinjamuri, D.L. Hagrman, D.W. Golden, P.E. MacDonald, "PBF LOCA test LOC-6 fuel-behavior report. [PWR]" Technical Report, 1983.
- [34] E. Vathonne, J. Wiktor, M. Freyss, G. Jomard, and M. Bertolus, "DFT plus U investigation of charged point defects and clusters in UO₂," J. Phys.-Condens. Matter, vol. 26, no. 32, p. 325501, Aug. 2014.
- [35] C. Lemaignan, "Science des matériaux pour le nucléaire", EDP Sciences. 2004.

- [36] A. F. Williams, *"The ELOCA fuel modelling code: past, present and future."* Conference, 2005.
- [37] P. B. Middleton, R. C. K. Rock, and S. L. Wadsworth, *"FACTAR 2.0 code validation."* 1997.
- [38] D. H. Barber, Y. Parlattan, and L. W. Dickson, *"Source IST 2.0: fission product release code."* 2005.
- [39] L. W. Dickson, R. S. Dickson, R. J. Lemire, and S. Sunder, *"SOPHAEROS-IST 2.0 validation: an update on the current status."* 2004.
- [40] B. Bonin, *"Monographie CEA/DEN, Les matériaux du nucléaire - Modélisation et simulation des matériaux de structure"*, 2016.
- [41] *"Qualification des outils de calcul scientifique utilisés dans la démonstration de sûreté nucléaire-1re barrière"* guide de l'ASN, 2017.
- [42] C. Foasso, *"Histoire de la sûreté de l'énergie nucléaire civile en France (1945-2000): Technique d'ingénieur, processus d'expertise, question de société"*, manuscrit de thèse, 2003.
- [43] F. J. Erbacher, *"LWR fuel cladding deformation in a LOCA and its interaction with the emergency core cooling,"* 1982.
- [44] A. W. Longest, *"Multirod Burst Test Program. Progress Report, January-June 1981. Volume 1,"* Oak Ridge National Lab., TN (USA), NUREG/CR-2366-Vol.1, 1981.
- [45] R. H. Chapman, *"Multirod Burst Test Program. Progress Report, January-June 1980,"* Oak Ridge National Lab., TN (USA), NUREG/CR-1883, 1981.
- [46] Y. K. Bibilashvili, N. B. Sokolov, and A. V. Salatov, *"WWER-1000 type fuel assembly tests on electro heated facilities in LOCA simulating conditions,"* 2002.
- [47] P. Askeljung, J. Flygare, D. Minghetti, *"NRC LOCA testing program at Studsvik, recent results on high burnup fuel"* Proc. Top Fuel Conf. 2012.
- [48] P. Doyle, J. Harp, *"Short Communication: Observation of Initial Burst Release of Fission Gas"*, JNM 584, 2023.
- [49] W. Schenk, H. Nabilek, *"Safety experiments for the demonstration of fission product retention in fully irradiated fuel elements"*, Proceedings of the 3rd JAERI symposium on HTGR technologies, 1996.
- [50] J.P. HIERNAUT et al, *"Fission product release and microstructure changes during Laboratory Annealing of a Very High Burn-up Fuel Specimen"*, JNM 377, 2008.
- [51] E. Guigues, A. Janulyte, Y. Zerega, Y. Pontillon, and J. André, *"On-Line Mass Spectrometry Measurement of Fission Gas Release From Nuclear Fuel Submitted to Thermal Transients"*, IEEE TNS, vol. 63, no. 3, 2016.
- [52] Y. Pontillon et al., *"Experimental and theoretical investigation of Fission Gas Release from UO₂ up to 70 GWd/t under simulated LOCA type conditions: The GASPARD Program"*, Proceedings of the International Meeting on LWR Fuel Performance, Orlando, 2004.

- [53] B. Bonin, "Monographie CEA/DEN - Fabrication des combustibles pour les réacteurs à eau", 2009.
- [54] B. Bonin, "Monographie CEA/DEN - A quoi ressemble le combustible des réacteurs à eau? " 2009.
- [55] S. Marguet, "La physique des réacteurs nucléaires", EDF R&D, 3^{ème} édition, 2017.
- [56] J. Noirot et al., « Fission gas inventory in PWR high burnup fuel : Experimental characterization and modeling », présenté à International Meeting on LWR Fuel Performance, Orlando, 2004..
- [57] H. Matzke, "Radiation damage in crystalline insulators, oxides and ceramic nuclear fuels", Radiation Effects, Vol 64 p3, 1982.
- [58] J.D. Barbat, " Le concepteur et le producteur d'alliages, la filière française du zirconium", SFEN, Revue Générale du Nucléaire vol 3, 1992.
- [59] B. Cox, K. Alcock, F.W. Derrick, "The oxidation and corrosion of zirconium and its alloys", Journal of Electrochemical Society, vol 108 p129-133, 1961.
- [60] N. Bererd et al., "Zirconium surface modification under fission product irradiation, Application to nuclear fuel cladding tubes", Surface and Coatings Technology, vol 158-159, p473-476, 2002.
- [61] J. Noirot et al., « High burn-up change in UO_2 fuels irradiated up to 83 GWd/tUin M5 claddings », Nuclear Engineering and Technology, vol. 41, no 2, Art. no 2, 2009.
- [62] R. Bès et al., "Experimental evidence of Xe and Kr incorporation site in UO_2 using high resolution XAS", Proc. NuMat, 2014.
- [63] R. Bès et al., "Experimental evidence of Xe incorporation in Schottky defects in UO_2 ", Applied Physics Letters, vol. 106, 2015.
- [64] K. Forsberg and A. R. Massih, "Diffusion theory of fission gas migration in irradiated nuclear fuel UO_2 ," J. Nucl. Mater., vol. 135, no. 2–3, pp. 140–148, 1985.
- [65] H. Matzke, "Gas release mechanisms in UO_2 – A critical review", Radiation effects, Vol 53, p219-242, 1980.
- [66] J.A. Turnbull, C.A. Friskney, J.R. Findlay, F.A. Johnson, A.J. Walter, "The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide", Journal of Nuclear Materials, Vol 107 p168-184, 1982.
- [67] M. Hirai, J. H. Davies, et R. Williamson, "Diffusivities of fission gas species in UO_2 and (U,Gd) O_2 nuclear fuels during irradiation", Journal of Nuclear Materials, vol. 226, no 1, p. 238-251, 1995.
- [68] J. Rest, M. W. D. Cooper, J. Spino, J. A. Turnbull, P. Van Uffelen, et C. T. Walker, " Fission gas release from UO_2 nuclear fuel: A review", Journal of Nuclear Materials, 2018.

- [69] J.A. Turnbull, C.A. Friskney, *"The relation between microstructure and the release of unstable fission products during high temperature irradiation of uranium dioxide"*, Journal of Nuclear Materials, Vol 71 p238-248, 1978.
- [70] R. Manzel et C. T. Walker, *"EPMA and SEM of fuel samples from PWR rods with an average burnup of around 100 MWd/kgHM"*, Journal of Nuclear Materials, vol. 301, no 2, Art. no 2, 2002.
- [71] J. Noirot, I. Zacharie-Aubrun, et T. Blay, *"Focused ion beam–scanning electron microscope examination of high burn-up UO₂ in the center of a pellet"*, Nuclear Engineering and Technology, 2018.
- [72] H. Stehle, *"Performance of oxide nuclear fuel in water-cooled power reactors"*, Journal of Nuclear Materials, Vol 153 p3-15, 1988.
- [73] Hj. Matzke et al., *"Oxide fuel transients, Journal of Nuclear Materials"*, Vol 166 p165-178, 1989.
- [74] Hj. Matzke, J. Spino, *"Formation of the rim structure in high burnup fuel"*, Journal of Nuclear Materials, Vol 248 p170-179, 1997.
- [75] M. Marcet, *"Contribution to High Burn up Structure the Fission Gas Release under Transient Conditions"*, Proc. ,Top Fuel meeting, Paris, 2009.
- [76] C. Cagna, *"Influence des gaz de fission sur l'état mécanique des combustibles oxydes irradiés"*, manuscrit de thèse, 2017.
- [77] V.V. Rondinella, T. Wiss, *"The high burn-up structure in nuclear fuel"*, Materialstoday - Volume 13, Issue 12, Pages 24-32, 2010.
- [78] K. Hanifi, *"Examens métallographiques microsonde et SIMS du crayon ALIX - D13 de l'assemblage FX0GA1 à gainage M5 après 7 cycles d'irradiation dans Gravelines 5"*, Note technique, SA3C/LE2C 08-002, 2008.
- [79] H. Kleykamp, *"The chemical state of LWR high-power rods under irradiation"*, Journal of Nuclear Materials, vol 84, p109-117, 1979.
- [80] H. Kleykamp, *"Post-irradiation examinations and composition of the residues from nitric acid dissolution experiments of high-burnup LWR fuel"*, Journal of Nuclear Materials, vol 171, p181-188, 1990.
- [81] J. Spino, J. Rest, W. Goll, C.T. Walker, *"Matrix swelling rate and cavity volume balance of UO₂ fuels at high burn-up"*, Journal of Nuclear Materials, vol 346, p131, 2005.
- [82] E. Muller, R. Masson *"Etude du relâchement des gaz de fission et de la fragmentation fine du combustible – Synthèse l'interprétation des essais MERARG et MEXIICO réalisés depuis 2016"* Note Technique CEA, NT 19-023 – A, 2019.
- [83] R. Dowek, *"Les gaz de fission dans les combustibles REP irradiés : un état détaillé à fort taux de combustion"*, manuscrit de thèse, 2021.
- [84] N. Capps and al *"Empirical and mechanistic transient fission gas release model for high-burnup LOCA conditions"*, Journal of Nuclear Materials, vol 584, 2023.

- [85] S. Clement, Y. Pontillon, H. Capdevila, S. Bernard, V. Marty, M. Pontillon, G. Volle, H. Desmots, F. Fiorito, "Qualification de l'instrumentation MERARG II", Note Technique, 2011.
- [86] T. Vidal, L. Gallais, R. Burla, F. Martin, H. Capdevila, S. Clément, Y. Pontillon, "Optical system for real-time monitoring of nuclear fuel pellets at high temperature", Nuclear Engineering and Design, 2019.
- [87] P. Menegon, L. Desgranges, Y. Pontillon, A. Poulesquen, "Evidence of two gas release kinetics during the oxidation of an irradiated PWR UO₂ fuel", Journal of Nuclear Materials, Volume 378, 2008.
- [88] Y. Pontillon, M.P. Ferroud-Plattet, D. Parrat, S. Ravel, G. Ducros, C. Struzik, I. Aubrun, G. Eminet, J. Lamontagne, J. Noirot, "A. Harrer Experimental and theoretical investigation of fission gas release from UO₂ up to 70 GWd/t under simulated LOCA type conditions: the GASPARD program" International Meeting on LWR Fuel Performance, Orlando, pp 490-499, Paper 1025, 2004.
- [89] Y. Pontillon, M. P. Ferroud-Plattet, and S. Ravel, "Projet FLASHMOX: programme d'essais analytique 'GASPARD' compte rendu d'essais et d'interprétation de la Campagne GASPARD A8 (UO₂ ALIX 6 cycles)," Note Technique CEA, 2003.
- [90] Y. Pontillon, L. Desgranges, and A. Poulesquen, "ADAGIO technique: From UO₂ fuels to MOX fuels," Journal of Nuclear Materials, vol. 385, pp. 137-141, 2009.
- [91] M.R. Tonks and al. "Mechanistic materials modeling for nuclear fuel performance", Annals of Nuclear Energy, 2017.
- [92] A. Bouloré, C. Struzik, P. Goldbronn, I. Guenot-Delahaie, J. Sercombe, "Fuel behaviour modelling in accident conditions in alcyone fuel performance code", IAEA-TECDOC-1913, 2020.
- [93] G. Pastore , K.A. Gamble, R.L. Williamson, S.R. Novascone, R.J. Gardner, J.D. Hales, "Analysis of fuel rod behavior during loss-of-coolant accidents using the BISON code: Fuel modeling developments and simulation of integral experiments", Journal of Nuclear Materials, vol 545, 2021.
- [94] J. Noirot, Y. Pontillon, S. Yagnik, J. A. Turnbull, and T. Tverberg, "Fission gas release behaviour of a 103 GWd/t(HM) fuel disc during a 1200 degrees C annealing test," Journal of Nuclear Fuel, vol. 446, no. 1-3, pp. 163-171, 2014.
- [95] E. Hanus, P. Malgouyres, S. Clement, R. Alloncle, M. Pontillon, et al. "MEXIICO a new equipment to study the pressure impact on the irradiated fuel behavior", Top Fuel Meeting, Boise, United States. 2016.
- [96] E. Kolstad, "High burn-up fuel behaviour under LOCA conditions as observed in Halden experiments," presented at the IAEA Technical meetin on fuel behaviour and modelling under severe transient and LOCA conditions", Proc. Mito, Japan, 2011.
- [97] J. Losfeld, L. Desgranges, S. Clement and Y. Pontillon, "MERARG Experimental Loop: A Forward Fitting Method for Fission Gas Release Analysis," IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 69, no. 4, pp. 786-791, 2022.

- [98] C. Caruso, F. Quarta, "Interpolation methods comparison", *Computers & Mathematics with Applications* Volume 35, Issue 12, Pages 109-126, 1998.
- [99] C. de Boor, "A Practical Guide to Splines", Springer, 1978.
- [100] P. Besse, C. Thomas-Agnan, "Statistique et analyse des données", tome 14, no 1, p. 55-84, 1989.
- [101] J. Cauquil, "Une nouvelle approche de la déconvolution des courbes de relâchement de gaz lors de traitements thermiques dans MERARG" Rapport de stage CEA, 2019.
- [102] G. Brindelle, "Etude du relâchement de gaz de fission entre 600°C et 800°C lors de transitoire thermique sur combustible irradié", manuscrit de thèse, page 51-64, 2017.
- [103] E. Castelier, N. Obry, "Mesure de la perméabilité du combustible nucléaire par interprétation des mesures de perçage de crayon", Note Technique CEA, 2015.
- [104] Hofmann, James R. and Charles C. Meek. "Internal pressurization in solid mixed-oxide fuel due to transient fission gas release. [LMFBR]." *Nuclear Science and Engineering*, 1977.
- [105] J.P. Breton, "Description de l'écoulement des gaz dans les porosités du combustible", NT SEMAR 96/39, 1996.
- [106] H. Darcy, "Les fontaines publiques de la ville de Dijon", Victor DALMONT, Paris, 1856.
- [107] S. Chapman et T.G. Cowling. "The mathematical theory of non uniform gases" Cambridge University Press, 3e ed., 1970.
- [108] "Guidelines for the validation and verification of quantitative and qualitative test methods", National Association of Testing Authorities, Technical Note, 2013.
- [109] "Cumulative Fission Yields" IAEA [consulté en ligne en 2023] <<https://www-nds.iaea.org/sgnuclat/c3.htm#92-U-235>>.
- [110] C. Liu, A. De Luca, A. Rosso, L. Talon, "Darcy's Law for Yield Stress Fluids", *Physical Review Letters* 122, 2019.
- [111] T. Alpettaz, S. Chatain, "Suivi de la cinétique de relâchement de Xe, Kr, Cs et I par spectrométrie de masse couplée à un dispositif de cellule d'effusion", NT DPC/SCCME 18-851-A, 2018.
- [112] T. Alpettaz, S. Chatain, "Suivi de la cinétique de relâchement de Xe, Kr, Cs et I par spectrométrie de masse couplée à un dispositif de cellule de Knudsen Bilan 2020", NT DPC/SCCME 20-920-A, 2020.
- [113] J. Noirot, L. Desgranges, et J. Lamontagne, "Detailed characterisations of high burn-up structures in oxide fuels", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 372, no 2, p. 318-339, 2008.
- [114] C.T. Walker, S. Bremier, S. Portier, R. Hasnaoui, et W. Goll, "SIMS analysis of an UO₂ fuel irradiated at low temperature to 65 MWd/kgHM", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 393, no 2, Art. no 2, 2009.

- [115] M. Horvath et al., "Analysis of xenon gas inclusions in nuclear fuel using laser ablation ICP-MS", *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, vol. 22, no 10, p. 1266-1274, 2007.
- [116] J. Noirot, Y. Pontillon, S. Yagnik, J. A. Turnbull, et T. Tverberg, "Fission gas release behaviour of a 103 GWd/tHM fuel disc during a 1200°C annealing test", *Journal of Nuclear Materials*, vol. 446, no 1, p. 163-171, 2014.

TABLE DES ILLUSTRATIONS

Figure 1.1-1 Schéma de fonctionnement d'un REP.....	14
Figure 1.1-2 Schéma d'un transitoire de température de la gaine et du combustible, lors d'un accident de perte de réfrigérant primaire. Conséquences sur le comportement du gainage combustible [30].....	16
Figure 1.1-3 Illustration des trois barrières de confinement dans un REP [31].....	17
Figure 1.1-4 Schéma des relations entre travaux de modélisations et travaux expérimentaux	20
Figure 1.2-1 illustration du procédé de fabrication des pastilles d'UO ₂	23
Figure 1.2-2 Micrographie d'une céramique UO ₂ après attaque chimique révélant les grains [54].....	24
Figure 1.2-3 Pastille combustible standard	24
Figure 1.2-4 Schéma d'un crayon combustible (dimensions REP 900 MW) [55].....	25
Figure 1.2-5 Représentation schématique d'un assemblage combustible	26
Figure 1.2-6 Exemple type de l'historique des cycles de puissance linéique dans un combustible UO ₂ , exploité en réacteur EDF [56].....	27
Figure 1.2-7 Schéma d'une réaction de fission.....	27
Figure 1.2-8 Taux de création des principaux produits de fission en REP par la fission d' ²³⁵ U pour un UO ₂ de 45 GWj/tU et enrichi à 4,25% en ²³⁵ U [17]	29
Figure 1.2-9 Représentation du gradient thermique radial dans une pastille combustible [59]	31
Figure 1.2-10 Coupe radiale d'un combustible UO ₂ irradié 1 cycle, visualisation des fissurations dues à l'irradiation [55].	31
Figure 1.2-11 Schématisation de la fracturation des pastilles, de la mise en diablo et de l'évolution du jeu entre les pastilles et la gaine au cours de l'irradiation [55].....	32
Figure 1.2-12 Schéma des formes et de la localisation prises par le gaz dans l'UO ₂ ...	33
Figure 1.2-13 Diagramme d'Arrhenius de la diffusion des gaz rare dans l'UO ₂ [34]	34
Figure 1.2-14 Image MET de l'interconnexion des bulles de gaz aux joints de grains [55].....	34
Figure 1.2-15 Évolution en fonction du taux de combustion de la fraction de gaz de fission relâchés dans des crayons REP UO ₂ et MOX . [62] [55].....	35
Figure 1.3-1 Images MEB de la périphérie, de la zone intermédiaire et de la zone centrale d'un combustible UO ₂ irradié 5 cycles en REP.....	37
Figure 1.3-2 épaisseur radiale du RIM en fonction du taux de combustion, mesurée par microscopie optique sur des coupes transversales de combustible REP [79].....	37
Figure 1.3-3 Profil radial Pu dans des pastilles REP irradié à 5, 6 et 7 cycles	38
Figure 1.3-4 Profil radial du néodyme dans une pastille REP irradié 7 cycles à 82,7 GWj/tU	38
Figure 1.3-5 Répartition radiale du xénon dans une pastille REP irradiée 5 cycles	39

Figure 1.3-6 Variation de la porosité du combustible en fonction du rayon de la pastille et du taux de combustion [84].	39
Figure 1.3-7 Section radiale d'un échantillon UO_2 (55,9GWj/tU) : Mesure par microsonde de la distribution radiale du xénon [73]	40
Figure 1.3-8 Modélisation des inventaires de gaz de fission dans l'échantillon UO_2 irradié (Données issues du modèle CARACAS [49])	40
Figure 1.3-9 Taux de relâchement de gaz de fission d'un échantillon REP de 71 GWj/tU en TT en fonction d'une contrainte hydrostatique [55]	42
Figure 1.4-1 Coupe schématique du laboratoire chaud « LECA-STAR »	43
Figure 1.4-2 Spectrométrie gamma d'une section de crayon combustible irradié	44
Figure 1.4-3 Schéma du circuit expérimental MERARG	46
Figure 1.4-4 Schéma du four dans MERARG	47
Figure 1.4-5 Schéma du détecteur de spectrométrie gamma dans MERARG	48
Figure 1.4-6 Schéma du Gen'Air en amont du four et du Jok'Air en aval dans MERARG	48
figure 1.4-7 schéma simplifié de la circulation des gaz dans merarg, entre le four à gauche et la chambre de comptage en haut a droite	50
Figure 1.4-8 graphique représentant la mesure du 85kr dans la chambre de comptage (à gauche) et sa déconvolution analytique (à droite)	51
Figure 1.4-9 graphique représentant la mesure du 85kr dans la chambre de comptage (à gauche) et sa déconvolution fortement altérée (à droite)	52
Figure 1.5-1 cinétique de relâchement mesurée lors du programme Gaspard	53
Figure 1.5-2 (a) et (b) macrographie de la coupe axiale d'un combustible UO_2 à 6 cycles après tt (c) et (d) détail le long d'un rayon de la coupe axiale d'un combustible UO_2 à 6 cycles après tt [58]	54
Figure 1.5-3 Détails MEB de la structure HBS (RIM) et à 0,75R du combustible UO_2 après TT [58]	54
Figure 1.5-4 Images MEB du RIM a) avant et b) après le traitement thermique de l'échantillon UO_2 irradié à 57,4 GWj/t [76]	55
Figure 1.5-5 Comparaison des mesures du xénon au SIMS acquises sur un échantillon UO_2 irradié à 57,4 GWj/t avant et après le traitement thermique de type APRP [76]	56
Figure 1.5-6 mesure du relâchement instantané de Kr85 au cours d'un traitement thermique d'un disque NFIR 76 GWj/t (gauche) et d'un disque NFIR 96 GWj/t (droite) [97]	57
Figure 1.5-7 Dispositif expérimental et schéma du crayon échantillon instrumenté [99]	58
Figure 1.5-8 Combustible pulvérisé au niveau de l'éclatement de la gaine et relocalisation [99]	58
Figure 2.1-1 observation de valeur négative lors de chute de température lors d'un traitement thermique	61
Figure 2.2-1 Exemple d'interpolation linéaire (bleu) et spline (vert) à partir de données finies (points rouges)	63

Figure 2.3-1 Fonction d'interpolation par spline (courbe bleue) sans lissage (en haut) et avec lissage (en bas).....	64
Figure 2.3-2 Cinétique mesurée lors de la fonte d'une ampoule étalon dans le four..	65
Figure 2.3-3 Illustration de la réponse impulsionnelle dans le système MERARG.....	66
Figure 2.3-4 graphique représentant la mesure du 85kr dans la chambre de comptage (à gauche) et sa déconvolution analytique (à droite) après traitement numérique des données (en bas – à droite).....	67
Figure 2.5-1 illustration de la structure temporelle classique du relâchement en trois bouffées successives	71
Figure 2.5-2 Cinétique de B1 en rampe de 1°C/s (a) et en rampe de 0,1°C/s (b)	72
Figure 2.5-3 Illustration de l'influence du taux de combustion sur B2.....	73
Figure 2.5-4 Exemple de cinétiques de relâchement de la deuxième bouffée	74
Figure 2.5-5 Cinétique du relâchement de B2 très reconnaissable pour des échantillons issus du même crayon père	74
Figure 2.5-6 Illustration de l'impact du temps de maintien en palier isotherme à 1200°C sur le relâchement de B3	75
Figure 2.5-7 Illustration de la corrélation entre relâchement et paliers isothermes	76
Figure 2.6-1 Relâchement gazeux du TT 77 sans paliers isothermes (à gauche) en comparaison avec le TT témoin 75 avec palier isotherme à 1200°C (à droite)	77
Figure 2.6-2 Deux TT dont les échantillons sont issus du même crayon, avec une B3 très différente.....	78
Figure 2.7-1 Cinétique de relâchement du 85Kr lors d'un TT en double chauffe sur un seul échantillon. À gauche la première chauffe (0,2°C/s) jusqu'à 1200°C, à droite la seconde chauffe (0,2°C/s) avec un premier palier de 15 minutes) 1200°C et un second palier à 1500°C.....	79
Figure 2.7-2 Mesure d'un relâchement de gaz avant le début du traitement thermique (T=-40min)	80
Figure 2.7-3 Corrélations entre le relâchement de B2 et le temps d'entreposage dans les travaux de brindelle [105].....	81
Figure 2.7-4 Relations entre le relâchement de B2 et le temps d'entreposage issu de l'exploitation de la base de données de MERARG : absence de corrélation.....	82
Figure 2.7-5 Relations entre la quantité de gaz relâchés par B3 et le temps d'entreposage.....	82
Figure 2.7-6 Traitement thermique de compréhension sur UO ₂ irradié à 72 GWj/tU, en atmosphère très réductrice (à gauche) et en condition classique (adroite).....	83
Figure 3.1-1 Schéma de la superposition des phases d'alimentation et de vidange qui constitue une bouffée.....	87
Figure 3.2-1 schéma de l'écoulement simplifié d'une bouffée.....	91
Figure 4.1-1 Cinétique de relâchement du 85Kr du TT 23	101
Figure 4.1-2 Ajustement du modèle (rouge) avec les données expérimentales de B3 (bleu) et les résidus de l'ajustement (en bas). À gauche à partir de la dérivée logarithmique, à droite sur les données expérimentales.....	102
Figure 4.1-3 Cinétique de relâchement du 85Kr du TT 79	103

Figure 4.1-4 Ajustement du modèle (rouge) avec les données expérimentales de B3 (bleu) et les résidus de l'ajustement (en bas). À gauche à partir de la dérivée logarithmique, à droite sur les données expérimentales.....	104
Figure 4.3-1 Ajustement du modèle (rouge) avec les données expérimentales de B1 (bleu) du TT 34 et les résidus de l'ajustement (en bas).	111
Figure 4.3-2 Ajustement du modèle (rouge) avec les données expérimentales de B1 (bleu) du TT 35 et les résidus de l'ajustement (en bas).	112
Figure 4.3-3 Ajustement du modèle (rouge) avec les données expérimentales de B1 (bleu) du TT 78 et les résidus de l'ajustement (en bas).	112
Figure 4.5-1 Cinétique de relâchement de 85Kr au cours du TT 78 avec deux paliers isothermes à 750°C et 850°C.	116
Figure 0-1 Cinétique de relâchement de combustible UO ₂ homogène dans MERARG, respectivement à 96,7 GWj/t _U et 76,1 GWj/t _U	120
Figure 0-2 Cinétique de relâchement de combustible UO ₂ homogène dans MEXIICO, respectivement à 96,7 GWj/t _U (a) et 76,1 GWj/t _U (b).	121
Figure 0-1 Évolution visuelle de la surface de l'échantillon au cours du TT 78.....	122
Figure 0-2 Évolution de l'intensité relâchée de césium et d'iode (Cs : 2,5x10 ¹⁶ at/cm ² et I : 1,3x10 ¹⁶ at/cm ²) pour une vitesse de chauffage de 10°C/min a) en fonction de la durée et b) en fonction de la température	123
Figure 0-3 Évolution de l'intensité relâchée de césium et d'iode (Cs : 1,3x10 ¹⁶ at/cm ² et I : 6x10 ¹⁵ at/cm ²) pour une vitesse de chauffage de 10°C/min a) en fonction de la durée et b) en fonction de la température.....	124

TABLE DES TABLEAUX

Tableau 1.2-1 Proportion massique de produits de fission générés par fission de l'uranium 235, dans un UO ₂ en REP [17]	28
Tableau 1.2-2 Proportion massique des principaux isotopes de xénon et de krypton, dans le combustible REP.....	30
Tableau 1.3-1 Données bibliographiques relatives aux Bulles micrométriques dans des échantillons d'UO ₂ irradiés en REP [86]	41
Tableau 2.4-1 synthèse de la base de données des traitements thermiques réalisée sur des échantillons UO ₂ irradiés	70
Tableau 4.1-1 Paramètres d'ajustement obtenu pour B3 sur les deux traitements thermiques 23 et 79.....	105
Tableau 4.2-1 Interprétation des paramètres d'ajustement pour évaluer la pression initiale du réservoir de gaz disponible au début du relâchement de B3.....	107
Tableau 4.2-2 Interprétation des paramètres d'ajustement pour évaluer la pression du réservoir de gaz disponible de B3 à température ambiante	107
Tableau 4.2-3 Interprétation des paramètres d'ajustement pour évaluer le volume du réservoir disponible de 85Kr de B3.....	108
Tableau 4.2-4 Interprétation des paramètres d'ajustement pour évaluer le volume du réservoir disponible de gaz rares de B3	108
Tableau 4.2-5 Interprétation des paramètres d'ajustement pour évaluer la perméabilité des chemins empruntés pendant le relâchement de B3.....	109
Tableau 4.2-6 Interprétation des paramètres d'ajustement pour évaluer la taille d'un chemin équivalent emprunté par les gaz lors de la vidange.....	110
Tableau 4.3-1 Paramètres d'ajustement obtenu pour B1 sur les trois traitements thermiques 34, 35 et 78	113
Tableau 4.4-1 Interprétation des paramètres d'ajustement pour évaluer la pression du réservoir de gaz disponible de B1 à température ambiante	114
Tableau 4.4-2 Interprétation des paramètres d'ajustement pour évaluer le volume du réservoir de gaz disponible de B1.....	114