

comportement et état chimique des combustibles irradiés

Un groupe d'étude du comportement et de l'état chimique des produits de fission dans les combustibles irradiés s'est réuni au Siège de l'AIEA, en août dernier.

Dix-neuf spécialistes de sept pays, dont trois envoyés par Euratom, ont participé à la réunion, présidée par M. K.E. Crouthamel, de l'Argonne National Laboratory.

Vingt-trois communications écrites ont été présentées et discutées. En attendant la publication des comptes rendus, le présent article donne un aperçu des travaux de la réunion.

OBJECTIF

La tâche principale du groupe d'étude était de faire le point des connaissances relatives au comportement chimique des combustibles nucléaires sous irradiation dans les conditions normales d'exploitation, et de cerner les problèmes qui se posent encore dans ce domaine. Ce comportement est lié aux nombreuses interactions entre combustible, produits de fission, gaines et caloporteur, dont il faut connaître l'influence pour déterminer les spécifications du combustible. Telle qu'elle se pose, avec ses incidences importantes sur la sûreté et l'économie des centrales, cette question est liée à l'un des problèmes les plus délicats du génie atomique — à savoir la mise au point d'un combustible sûr, fiable et à haut rendement.

L'Agence, qui abordait directement cette question pour la première fois, a estimé que les efforts déployés dans ce domaine, notamment par les pays qui font des études de réacteurs surgénérateurs à neutrons rapides, rendaient opportune la réunion de ce groupe d'étude. En raison de l'importance accordée aux combustibles pour réacteurs rapides les discussions du groupe d'étude ont été axées sur les combustibles d'oxydes — les plus avantageux actuellement pour les surgénérateurs rapides refroidis par un métal liquide. Les discussions ont aussi porté sur les résultats récemment enregistrés dans le domaine des combustibles de carbures et autres combustibles de pointe, qui ont fait l'objet de nombreuses études.

Le thème de cette réunion a un rapport très étroit avec le programme de l'Agence sur la technologie du combustible nucléaire, et avec d'autres réunions récemment organisées par l'Agence et traitant de sujets apparentés, dont: a) le Colloque sur les méthodes analytiques dans le cycle du combustible nucléaire (décembre 1971); b) le Groupe d'étude de la physique de la combustion nucléaire (juillet 1971); c) le Groupe d'étude du recyclage du plutonium dans les réacteurs de puissance à neutrons thermiques (juin 1971); d) le Colloque sur l'emploi du plutonium comme combustible nucléaire (mars 1967).

EXPOSE RECAPITULATIF

La chimie des combustibles irradiés est d'une extrême complexité. La transformation d'une fraction des actinides initialement présents en nouveaux éléments, la production de produits de fission solubles ou insolubles dans le combustible, la redistribution des espèces mobiles ainsi que leurs réactions chimiques avec le combustible, la gaine et le caloporteur ne sont qu'un petit nombre des modifications qu'il faut étudier et connaître si l'on veut garantir la sûreté et la fiabilité d'exploitation des centrales nucléaires.

De tous les types de combustible nucléaire examinés, c'est le combustible d'oxyde, gainé d'acier inoxydable – actuellement jugé le meilleur pour les réacteurs surgénérateurs refroidis par un métal liquide – qui a le plus retenu l'attention du groupe d'étude, vu l'imminence de la mise en service de plusieurs grandes centrales de cette filière.

Le confinement des produits de fission, dont le coût représente un élément considérable du prix d'une centrale nucléaire, nécessite de nombreuses études de composants autres que l'élément combustible. Toutefois, c'est l'intégrité de la gaine qui importe le plus, d'où la nécessité de bien comprendre les interactions physico-chimiques – causes possibles de ruptures – entre le combustible et les produits de fission, d'une part et la gaine, d'autre part. Parmi les mécanismes de rupture de gaine qu'il faut envisager, citons la pression interne créée par les gaz de fission, la corrosion des gaines, le gonflement ou au contraire la densification du combustible. Ainsi, pour les éléments combustibles d'oxydes mixtes, gainés d'acier inoxydable, la corrosion interne est un phénomène important d'interaction chimique, régi de façon déterminante par le potentiel en oxygène à l'interface combustible-gaine. La variation de cette grandeur selon le taux de combustion, le gradient thermique, les conditions de fonctionnement et d'autres paramètres n'est pas encore bien connue et sa détermination pose encore d'importants problèmes expérimentaux et analytiques.

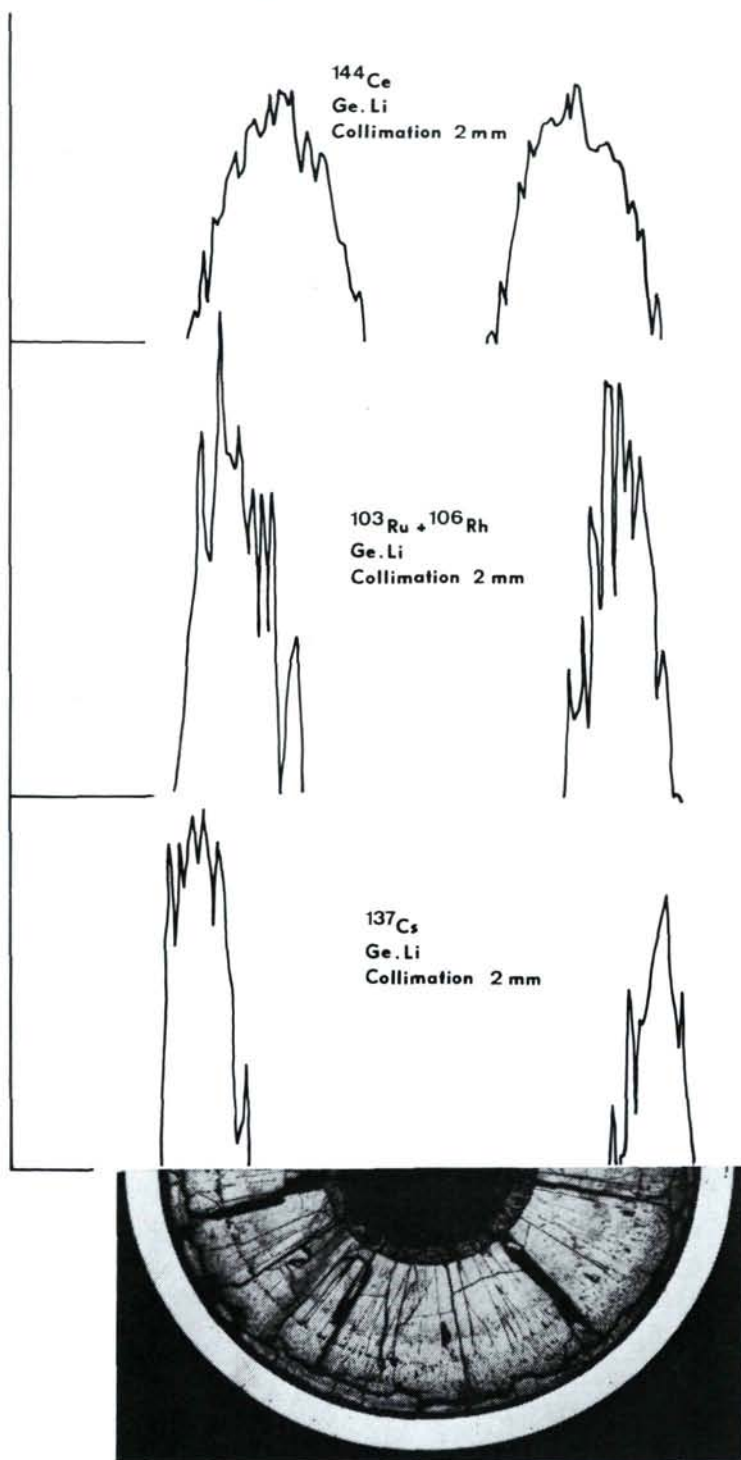
Le groupe d'étude a consacré ses travaux aux trois sujets principaux ci-après:

a) Phénomènes de transport: distribution, variable dans le temps, du rapport oxygène/métal dans le combustible; redistribution du rapport U/Pu; problèmes relatifs au transport, à la fixation et au dégagement des gaz de fission; transport des produits de fission solides et volatils.

b) Interactions entre la gaine et l'ensemble combustible – produits de fission, notamment l'important problème de la corrosion liée aux variations du potentiel en oxygène dans les combustibles d'oxyde et d'oxydes mixtes.

c) Thermodynamique et équilibre des phases: applications des valeurs disponibles des constantes thermodynamiques et d'équilibre des phases à la détermination de l'état chimique du combustible irradié.

Un certain nombre de problèmes, nécessitant de nouvelles études, ont été cernés.



Analyse radiale des produits de fission par spectrométrie gamma.

Voici quelques-uns des plus importants:

1. Nécessité de mesurer directement la redistribution de l'oxygène et de l'évaluer en fonction des porteurs d'oxygène qui entrent en jeu;
2. La prévision des modifications qui surviennent dans le combustible dans diverses circonstances nécessite l'élaboration de concepts mécanistes et de modèles de redistribution. Par ailleurs, le gonflement des aiguilles combustibles et l'attaque des gaines par certains constituants réactifs ne peuvent être prévus si l'on ne connaît pas bien les facteurs cinétiques qui influent sur le transport de l'oxygène et des produits de fission volatils;
3. Pour bien comprendre les conditions qui favorisent l'attaque des gaines, il faut plus de renseignements sur la thermodynamique et les relations entre les divers réactifs et produits selon les phases, sur la modification des propriétés protectrices des couches d'oxyde du combustible par les produits de fission, sur le rôle du césium et du tellure dans l'interaction combustible-gaine, et sur la prévention de l'oxydation par l'emploi de «getters».
4. Des mesures du potentiel en oxygène dans divers systèmes sont essentielles pour une meilleure compréhension des processus qui interviennent. Ces mesures sont la détermination du potentiel d'oxydation du système mixte U-Pu-O au-dessus de 3 000°C et de sa variation en fonction de la teneur d'ions des terres rares, et la détermination du potentiel en oxygène pour lequel a lieu l'oxydation des inclusions contenant du molybdène dans le combustible irradié.

RECOMMANDATIONS

Le groupe d'étude recommande que l'Agence envisage la possibilité d'organiser sur le plan international la comparaison des méthodes d'analyse visant à prévoir la composition chimique des combustibles irradiés.

La décision de réunir ultérieurement le groupe d'étude devrait être fondée sur les progrès enregistrés au cours des quelques prochaines années. Le groupe d'étude a estimé que son ordre du jour ne portait que sur une petite partie d'un secteur actif en plein développement et a pensé qu'il faudrait envisager de donner à la prochaine réunion une plus grande portée.