Etude du comportement thermomécanique de particules combustibles enrobées de type TRISO pour réacteur nucléaire à haute température (HTR)

Ing. A. MEURENS Lic. M. JEUNECHAMPS-GUSTIN Ir S. SHIHAB GRAMME – Liège

Dans le cadre d'un projet européen, un algorithme mathématique a été établi et implémenté. Il permet d'évaluer, en fonction de l'irradiation, l'état des contraintes et déformations dans le combustible nucléaire des réacteurs de IV^e génération de type HTR (High Temperature Reactor).

Les résultats obtenus seront ajoutés et comparés aux résultats fournis par les autres participants du projet dans le but de définir un comportement global du combustible sous irradiation.

Mots-clés : réacteur à haute température, combustible nucléaire, particules TRISO, couches de protection.

In the framework of a European project, a mathematical algorithm has been developed and implemented to assess stresses and strains in High Temperature Reactors fuel, and this according to irradiation (HTR: nuclear reactors of the fourth generation).

The results you get will be added and compared to the results of other project members to define a global theorical behaviour of the fuel when irradiated.

Keywords: high temperature reactor, nuclear fuel, TRISO particles, protection shells.

Revue Scientifique des ISILF n°22, 2008.

1. Introduction

1.1 Le réacteur HTR

Le principe du HTR est identique à celui d'un réacteur à fission ordinaire si ce n'est que le fluide caloporteur est de l'hélium gazeux sous pression (~50 bar), qui, par détente dans une turbine à gaz, produit de l'électricité. La température de l'hélium en sortie de réacteur peut atteindre 1000°C, ce qui offre un meilleur rendement thermodynamique.

Les premiers réacteurs à caloporteurs gazeux ont été développés dans les années 60-80, notamment aux États-Unis, Grande-Bretagne et en Allemagne. Deux réacteurs de ce type sont actuellement en exploitation : le HTTR au Japon et le HTR-10 en Chine. Un réacteur modulaire PBMR (Pebble Bed Modular Reactor) est en construction en Afrique du Sud. La Belgique a participé activement dans le développement du combustible pour ce type de réacteurs lors des activités du groupe mixte BELGONUCLEAIRE – SCK/CEN (Centre d'Etudes Nucléaire de Mol) dans les années 60-70.

Actuellement, de nombreux projets, dont le projet européen PuMA¹ auquel participe BELGONUCLEAIRE, sont développés dans le but de rendre les réacteurs plus performants et opérationnels. Un objectif de PuMA, donnant lieu à cette étude, est la mise au point d'éléments additionnels clés dans l'utilisation et la transmutation du plutonium et des actinides mineurs dans les HTR actuels et futurs.

Concrètement, il est demandé à chaque participant muni de son propre algorithme, de fournir des résultats sur base d'un jeu commun de données (méthode de benchmarking). L'établissement d'une base de résultats constituera une base de référence solide et utile pour la validation des codes de type éléments-finis développés actuellement par des centres de recherche de grande envergure dont le CEA (Commissariat à l'Energie Atomique France).

¹ « Plutonium and Minor Actinides Management by Gas-Cooled Reactors »

Le code développé repose sur des hypothèses simplificatrices et permet tout au plus de donner un ordre de grandeur de l'état de sollicitation des couches. Il ne s'agit donc pas d'un code dimensionnant et complet.

1.2 Les particules TRISO

Le combustible TRISO (fig. 1) est composé de particules sphériques d'environ 1 millimètre de diamètre encastrées dans une matrice de carbone graphite formant des compacts de combustible (unités cylindriques de combustible de 4 cm de hauteur) ou formant des boulets (d'environ 10 cm de diamètre).

Les particules sphériques, dites TRISO, sont constituées d'un noyau en matière fissile enrobé de 3 couches de carbone et de silicium déposées chimiquement. Cette appellation provient de « TRI-ISOtropic », les couches étant initialement isotropes. Ces 3 couches confèrent à la particule TRISO une grande étanchéité et une bonne résistance, permettant aussi la rétention des produits de fissions du noyau de la particule.

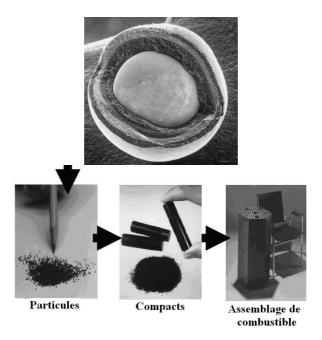


Figure 1 – Agrandissement d'une particule TRISO (au-dessus) et description des éléments constitutifs du HTR (en dessous).

Sous irradiation, par l'effet des dilatations thermiques différentielles, gonflements et fluages, un champ de contraintes et de déformations se développe dans ces couches. La modélisation consiste à évaluer ce niveau de contraintes et déformations au cours de l'irradiation.

2. Généralités sur les particules TRISO

2.1 Rôles des différentes entités de la particule

Le centre de la particule est constitué d'un noyau : sphère d'oxyde (ou de carbure) d'uranium, de plutonium ou de thorium.

L'enrobage est de structure « PyC-SiC-PyC » :

- une couche poreuse (tampon ou « buffer ») et une couche dense («Inner»-PyC) de carbone pyrolytique (carbone amorphe produit par la décomposition à haute température d'un hydrocarbure gazeux);
- une couche de carbure de silicium (SiC);
- une dernière couche dense de carbone pyrolytique («Outer»-PyC).

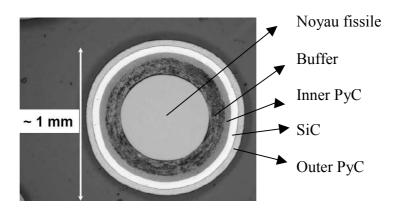


Figure 2 : Céramographie en coupe d'une particule enrobée de type TRISO

Suivent les principaux rôles des composants de la particule TRISO.

Composants	Rôle
Noyau	Combustible source d'énergie par fission.
Buffer	Offre un volume libre grâce à ses porosités internes pour recevoir les gaz de fission; Protège les couches extérieures des bombardements de produits de fission.
IPyC	Maintient le SiC en compression; Barrière à la diffusion du HCl gazeux lors de la formation de la couche supérieure de SiC à partir de Methyltrichlorosilane, ce qui empêche donc la corrosion du noyau; Barrière de diffusion pour les produits de fission métalliques.
SiC	Retient les gaz et les produits de fission à l'intérieur de la particule. Elle assure l'étanchéité.
ОРуС	Maintient le SiC en compression ; Protection pour le SiC contre les attaques chimiques externes ; Surface de liaison lors du compactage des particules TRISO.

2.2 Comportement des particules sous irradiation

Sous irradiation, un champ de contraintes et de déformations résulte de différents phénomènes physico-chimiques :

- des changements de dimensions des couches induits par l'irradiation (gonflement et densification);
- du gonflement interne du noyau combustible dû à la production de gaz et produits de fission (une fission produit deux atomes qui occupent grosso modo chacun le même volume que l'atome fissionné.);
- de la pression interne due aux gaz de fission relâchés par le noyau, retenus dans le buffer ;
- pour les combustibles à base d'oxyde, de la pression interne associée à la production de monoxyde de carbone (production de CO résultant de la réaction du carbone des couches et de l'oxygène du combustible);
- de la dilatation thermique différentielle entre composants de la particule;
- des contraintes résiduelles dues à la fabrication.

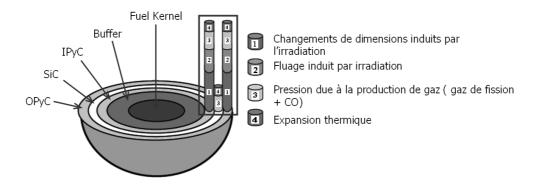


Figure 3 : Sources de déformation dans chaque couche d'une particule TRISO

Ces différentes contraintes sont partiellement accommodées par du fluage² sous irradiation. La densification, le fluage et la pression interne des gaz constituent les principales sources de déformations.

Des mécanismes de rupture s'engagent alors : fissuration du noyau due principalement à la formation des produits de fission, rupture du buffer suite à l'expansion du noyau et densification sous irradiation, rupture du SiC en traction ou compression tangentielle (§3.2 Mécanismes de rupture), rupture des autres couches suite à l'énergie libérée par la rupture du SiC. Tous les produits de fission sont alors libres d'aller contaminer le circuit primaire.

Des études en cours depuis une trentaine d'années tentent de déterminer la probabilité d'occurrence pour chaque mode de rupture. Cet aspect aléatoire des phénomènes et la dispersion observée sur les paramètres d'entrées du modèle thermomécanique (dimensions, propriétés mécaniques,...) imposent une structure de programme centrée sur un modèle thermomécanique, autour duquel s'articule un modèle probabiliste.

Une méthode de type « Monte-Carlo » permet de déterminer globalement la fraction de particules rompues pour un temps donné. Cette méthode consiste à répéter un très grand nombre de fois le calcul des contraintes sur la même durée donnée pour un très grand nombre de cas (chaque cas étant défini par

² Le fluage est le phénomène par lequel un matériau plastique sous contrainte subit une déformation au cours du temps.

des valeurs de paramètres d'entrée différentes, en supposant la distribution relative à chaque paramètre connue).

Ainsi, pour une durée donnée, on peut faire une estimation à partir d'un nombre suffisant d'essais, du pouvoir de confinement des couches protectrices dont le rôle est d'empêcher les produits radioactifs de se disperser dans l'environnement des installations nucléaires.

Cette partie probabiliste ne sera pas détaillée davantage. Elle sort du cadre de cette étude uniquement consacrée à la partie thermomécanique.

3. Modélisation

Le programme informatique a été développé en langage de programmation FORTRAN (f90). Il est composé de deux parties distinctes :

- une partie fabrication évaluant les contraintes et déformations résiduelles dues aux conditions de dépôt des couches ;
- une partie irradiation évaluant les contraintes et déformations dans la structure « PyC-SiC-PyC » en fonction de la dose de neutrons envoyée.

Pour les deux parties, l'évaluation des contraintes est basée sur un modèle élastique linéaire axisymétrique : la seule dimension est le rayon de la particule. Toutefois, les algorithmes de résolution diffèrent.

3.1 Fabrication

Des contraintes et déformations apparaissent suite aux différentes températures de dépôt des couches et aux différents coefficients d'expansion thermique des matériaux utilisés. Pour cette partie, le code calcule :

- les contraintes résiduelles dans les couches ;
- les dimensions de la particule à température ambiante ;
- l'épaisseur du jeu qui s'observe à température ambiante entre le noyau et le buffer.

Ceci permet de comparer les valeurs calculées par le programme à température ambiante, aux mesures dimensionnelles et résultats des contrôles de qualité effectués après fabrication sur des échantillons de particules.

Un modèle similaire a fait l'objet d'un travail de fin d'études antérieur à l'Institut Gramme et dont une synthèse a été publiée dans la Revue Scientifique des ISILF, n°20.

3.2 Irradiation

Explication du modèle

Lors de l'irradiation, le programme développé calcule l'évolution des contraintes et déformations dans les couches d'enrobage « PyC-SiC-PyC » en fonction de la dose de neutrons absorbée et cumulée dans le temps.

La méthode consiste à discrétiser le temps et à calculer l'état de contraintes à chaque étape de temps. Les couches d'enrobage sont subdivisées en « n » éléments de coques concentriques. L'expression des contraintes dans un élément de coque provient de la résolution de 3 équations fondamentales :

1) l'équation d'équilibre d'un élément infinitésimal de coque sphérique de rayon 'r' et d'épaisseur 'dr', issue de [2]:

$$\frac{d\sigma_{r}}{dr} + \frac{2}{r} \cdot (\sigma_{r} - \sigma_{\theta}) = 0 \tag{3.1}$$

où σ_r représente la contrainte radiale et σ_{θ} la contrainte tangentielle.

- 2) l'équation de compatibilité des déplacements radiaux et tangentiels au sein d'un élément de couche;
 - 3) l'expression des déformations totales par superposition des effets:

$$\varepsilon_{tot} = \varepsilon_{el} + f \text{ où } f = \varepsilon_{th} + \varepsilon_{d} + \varepsilon_{c} + \varepsilon_{fab}$$
 (3.2)

Les déformations totales ' ϵ_{tot} ' (ou à l'équilibre) sont la somme des déformations libres 'f' et des déformations élastiques ' ϵ_{el} '. La déformation « libre » d'une coque est la déformation observée en l'absence de sollicitation ou d'interaction avec une autre entité et la déformation élastique provient des interactions entre coques. Les déformations libres regroupent les déformations dues à l'expansion thermique ' ϵ_{th} ', aux changements de dimensions sous irradiation ' ϵ_{d} ', au fluage ' ϵ_{c} ' et aux contraintes résiduelles dues à la fabrication ' ϵ_{fab} ';

4) le déplacement radial et les contraintes radiales et tangentielles ont été calculées en écrivant et en résolvant l'équation différentielles d'équilibre, équation différentielle du second ordre dont la solution générale dépend dès lors de 2 constantes C_I et C_{II}.

On obtient l'expression de la contrainte radiale et tangentielle ainsi que celle du déplacement en fonction :

- du rayon 'r';
- des propriétés mécaniques de la coque (module de Young, coefficient de Poisson);
- des déformations libres 'f' dans la coque ;
- de deux constantes C_I et C_{II}, déterminées par les conditions aux limites, en imposant l'égalité des contraintes et/ou des déplacements radiaux aux interfaces entre coques. Ainsi chaque coque interagit avec ses voisines.

Connaissant C_I et C_{II} d'un élément coque, on trouve l'état de contrainte pour un rayon 'r' quelconque de cet élément coque.

A chaque étape de temps, les incréments de déformations libres 'f' sont cumulés, ce qui entraı̂ne une modification des interactions entre coques et donc une modification de la valeur des contraintes.

Aux extrémités de la structure « PyC-SiC-PyC », les deux conditions aux limites sont :

- à la frontière (ou rayon) externe, la contrainte radiale est égale à la pression du fluide caloporteur;
- à la frontière interne, la contrainte radiale est donnée par la pression des gaz relâchés hors du noyau. Notons la présence d'un jeu après fabrication qui fait office de volume libre. Ce jeu diminue au cours de l'irradiation suite à la densification des couches (qui se rétractent vers le centre de la particule (voir § 2.2) et au gonflement du noyau. Ce jeu peut se fermer. Le volume libre est alors uniquement constitué des porosités ouvertes³ du noyau. Dans ce cas, la contrainte radiale à la frontière interne 'r_i' est donnée par :

$$\sigma_r(r_i) = \max(P_{contact}, P_{gaz}) \tag{3.3}$$

 $P_{\it gaz}$ étant la pression due à la présence de gaz dans les porosités ouvertes ;

³ Porosité ouverte : porosité communiquant avec la surface externe du noyau.

 $P_{contact}$ étant la pression de contact « noyau – couches ». Rapidement importante lors du contact, elle mène presque instantanément à une rupture des couches en traction tangentielle.

Relâchement gazeux et gonflement du noyau

Comme expliqué précédemment, le relâchement des produits de fission gazeux et le gonflement du noyau sont à prendre en compte dans l'évaluation des contraintes dans les couches (condition interne de pression).

A partir des paramètres suivants :

- composition (pourcentage atomique d'isotopes d'Uranium, de Plutonium ou de Thorium) ;
- pourcentage de la densité théorique du combustible ;
- stoechiométrie de l'oxyde (MO_{2±x}) ;
- dimensions du noyau,

le code calcule la quantité molaire de gaz produite et relâchée.

Les gaz relâchés sont de 3 types :

- les gaz de fission (essentiellement le Xénon et le Krypton);
- le CO résultant de la réaction de l'oxygène provenant de l'oxyde avec le carbone des couches ;
- l'Hélium (produit par décroissance alpha des actinides, fissions ternaires et réaction n-alpha dans l'oxygène).

Sans entrer dans les détails, la production d'Hélium a été intégrée au code car elle doit être prise en compte à haut taux de combustion pour les combustibles à base de Plutonium et Thorium.

Mécanisme de rupture

Voici quelques illustrations décrivant le mécanisme principal responsable de l'apparition des contraintes dans les couches de la particule TRISO. Par souci de compréhension, l'illustration se limite au cas d'une structure PyC-SiC. La présence de la couche de PyC externe pour une structure « PyC-

SiC-PyC » ne fait qu'accentuer le phénomène décrit. Notons que l'illustration se limite uniquement aux contraintes tangentielles⁴.

La figure 4.a représente une couche de PyC sur laquelle a été déposée une couche de SiC. Si la couche de PyC subit une densification tangentielle (contraction circonférencielle) et si elle n'est pas solidaire de la couche de SiC, sa circonférence se contracte librement. La couche de PyC occupe alors la position sur la figure 4.b. Par contre, la couche de SiC n'est pas déformée.

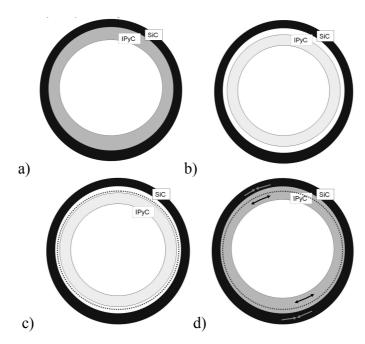


Figure 4 : Schématisation des interactions entre couches

En réalité, la couche de SiC est collée à la couche de PyC qui se contracte vers le centre. Par conséquent, l'interface entre les deux couches occupe une position intermédiaire entre la position initiale de l'interface et le rayon externe du PyC qui se serait densifié librement (fig. 4.c). Comme le SiC retient le PyC, il apparaît des contraintes tangentielles de compression dans le SiC (fig. 4.d). A l'opposé, il apparaît des contraintes de traction dans le PyC qui tend à se contracter mais est retenu par la couche de SiC.

⁴ Elles sont de l'ordre de 10 fois plus élevées que les contraintes radiales. Cela est dû à la faible épaisseur des couches relativement à leurs rayons.

Le mécanisme illustré ci-dessus ne provoque pas de rupture. Au contraire, puisque le SiC résiste bien à la compression, ce phénomène permet de précontraindre le SiC en compression.

Ainsi, lorsque la pression des gaz croît au cœur de la particule (image d'un ballon que l'on gonfle), le SiC devrait se trouver en traction tangentielle (fig. 5). Grâce à la pré-contrainte en compression, le SiC perd peu à peu son état de compression sans toutefois passer en traction trop rapidement.

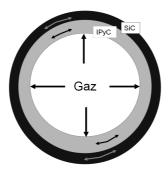


Figure 5 : Schématisation des efforts de traction tangentielle dans une couche soumise à pression interne

En résumé, l'état de contrainte de la couche de SiC résulte donc de deux phénomènes antagonistes :

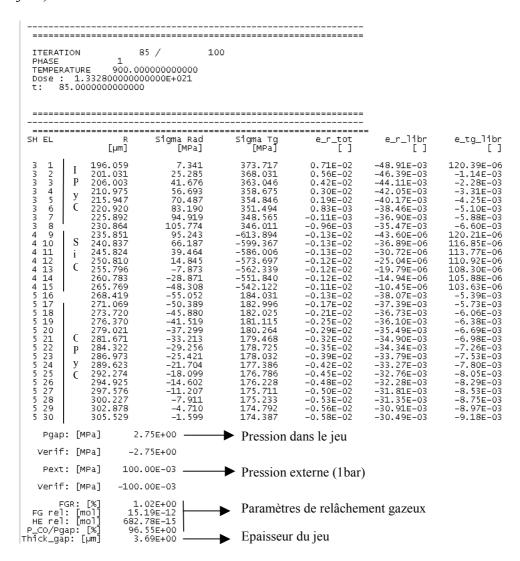
- la compression tangentielle induite par la densification du PyC;
- la traction tangentielle induite par le relâchement gazeux.

Il y a rupture du SiC lorsque la traction s'établit et que la contrainte calculée dépasse alors la limite élastique de la couche de SiC ($R_{compression} = 460 \text{ MPa}$; $R_{traction} \approx 0 \text{ MPa}$).

Lorsque la couche de SiC est rompue, l'étanchéité de la particule n'est plus assurée. Notons que d'autres phénomènes peuvent « accélérer » la rupture : migration du noyau et corrosion du SiC.

4. Résultats obtenus

Le tableau suivant présente les résultats d'irradiation (contraintes radiales et tangentielles, déplacement radial, quantité et composition des gaz relâchés) fournis par le code lors d'une étape de temps (ici la 85^e étape de temps de 1 jour).



Résultats donnés par COCONUT V3.0 pour une étape de temps

On peut remarquer que les couches analysées sont les couches d'IPyC (n°3), SiC (n°4), OPyC (n°5). Ces couches sont décomposées chacune en un nombre d'éléments imposé dans le fichier d'entrées. Les contraintes et déformations sont évaluées au rayon moyen de chaque élément. On peut ici vérifier la continuité entre éléments au niveau de la déformation radiale 'e_r_tot' et de la contrainte radiale 'sigma_rad'.

En retenant par couche les valeurs maximales et minimales des contraintes radiales et tangentielles, on peut tracer les courbes de contrainte maximale et minimale en fonction de l'irradiation. La figure 6 représente les deux courbes (max et min) de la contrainte tangentielle dans l'IPyC fournies par le module graphique du code⁵.

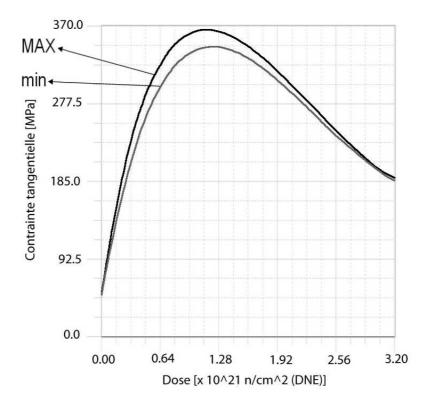


Figure 6 : Contrainte tangentielle en [MPa] dans l'IPyC en fonction de la dose de neutrons envoyée en [10²¹ neutrons/cm²]

⁵ Utilisation de l'add-on FORTRAN ARRAY VISUALIZER 1.6.

4.1 Explication de l'allure des courbes de contraintes tangentielles en fonction de l'irradiation.

Nous avons relevé les trois phénomènes jouant un rôle dans l'apparition ou la relaxation des contraintes dans les couches de protection : la densification du PyC, le fluage du PyC et le relâchement gazeux.

Nous avons vu également que l'IPyC était en traction tangentielle lorsqu'il se densifiait. Cela s'observe sur la figure 5 en début d'irradiation.

On remarque enfin que le taux de croissance des contraintes décroît progressivement et s'annule aux environs de $1,2\cdot 10^{21}\,n\cdot cm^{-2}$ (dose intégrée de neutrons). Cela est dû au fluage sous irradiation du PyC. Le taux de déformation par fluage est directement proportionnel au niveau de contrainte dans le matériau :

$$\varepsilon_c = K \cdot \sigma(t) \cdot \Phi(t) \tag{4.1}$$

οù

 ε_c est le taux de déformation de fluage en $[s^{-1}]$;

K est le facteur de proportionnalité de fluage en $[cm^2 \cdot n^{-1} \cdot Pa^{-1}]$;

 σ est la contrainte en [Pa].

Cette déformation de fluage agit dans le sens inverse des déformations élastiques provoquant l'état de contrainte. Ainsi, il y a relaxation des contraintes suite à la présence de fluage dans le PyC.

La figure 7 représente les actions des deux phénomènes : densification et fluage du PyC. Notons également la présence du niveau de contrainte initial non nul provenant de la fabrication. Cette figure décrit à nouveau les contraintes tangentielles dans le PyC malgré que l'intérêt soit porté sur les contraintes tangentielles dans le SiC (le SiC assurant l'étanchéité de la particule). De nouveau ce choix est fait par souci de compréhension. Toutefois, l'allure de la courbe des contraintes tangentielles dans le SiC est la même mais de signe opposé (compression au lieu de traction tangentielle).

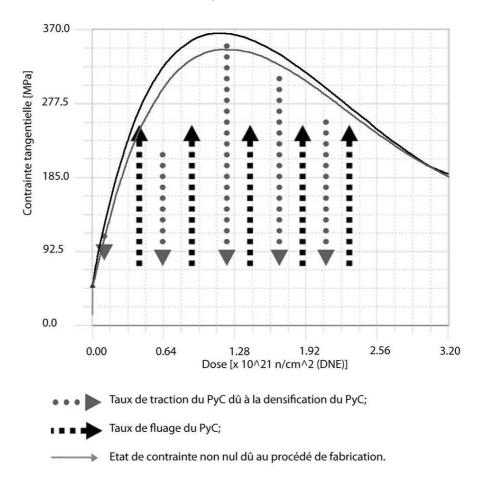


Figure 7 : Evolution de la contrainte tangentielle en [MPa] dans la couche d'IPyC en fonction de l'irradiation en [.10²¹ n/cm²]

Les flèches de la figure ci-dessus donnent une idée du taux de variation des contraintes dû à chaque phénomène pris séparément (modèle élastique linéaire, ce qui permet la superposition des effets (cfr. équation (3.2)).

4.2 Importance du relâchement gazeux

Dans le résultat précédent, l'effet de la pression interne n'a pas été abordé. Or, le relâchement gazeux est très important à haut taux de combustion et à haute température (en pratique, la totalité des gaz de fission sont alors relâchés). Dans le cas précédent, le taux de combustion n'a pas dépassé 8 %

FIMA⁶ et la température 900°C (relativement basse). A la 85^e étape sur 100 (tableau 1), proche de 8 % FIMA, on voit que la fraction de gaz relâchée est seulement de 1% et que la fraction CO/FGR est de 96 %. Si le relâchement était total, les autres paramètres étant constants, on aurait une pression interne environ deux fois plus importante.

Notons cependant qu'à 8 % FIMA, on observe déjà l'impact de la pression interne, suite à la formation de CO. Cela s'observe sur les résultats de la figure 8 donnant la contrainte tangentielle dans le SiC en fonction de l'irradiation. Les sources de contraintes sont uniquement les déformations résiduelles de fabrication et la pression interne (pas de densification, ni fluage du PyC). L'état de contrainte en compression dû à la fabrication (et qui reste constant lors de l'irradiation) est légèrement compensé par une traction due à la pression interne.

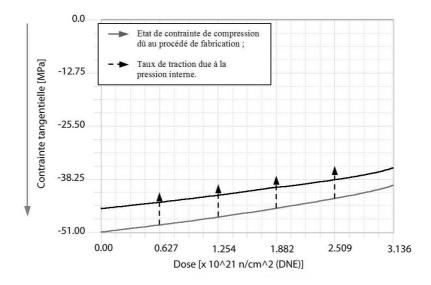


Figure 8 : Evolution de la contrainte tangentielle dans la couche de SiC en [MPa] en fonction de l'irradiation en [10²¹ n/cm²]

⁶ FIMA (Fission per Initial Metallic Atom): le FIMA est une unité de taux de combustion d'un combustible nucléaire, exprimée en termes de proportion de fissions réalisées dans une population d'atomes de métal lourd.

5. Conclusion

L'étude réalisée comprenait trois parties. La partie fabrication a permis de modéliser les contraintes dans la particule suite à la fabrication (déformations libres uniquement dues à l'expansion thermique).

Dans la seconde partie, concernant l'irradiation de la particule, nous avons écrit le système linéaire permettant de déterminer les constantes C_I et C_{II} de chaque élément coque (voir « explication du modèle », 3.2). Nous y avons intégré les déformations de fluage et résolu les problèmes de divergence et d'instabilité y afférant en limitant les étapes de temps à des « microétapes ». Le temps de calcul en est sensiblement allongé, ce qui s'explique par les dimensions du système linéaire à résoudre à chaque micro-étape (système 60x60 dans le cas d'un choix de 30 éléments coques (tableau 1)). Dans cette partie, il a fallu également modéliser le contact entre le noyau et les couches lors de la fermeture du jeu.

La dernière partie, concernant toujours l'irradiation, a été consacrée à la production et relâchement gazeux ainsi qu'au gonflement du noyau. Ceci a nécessité un travail pour incorporer des modules existant à BELGONUCLEAIRE.

Les résultats obtenus sont cohérents et sont comparables à ceux provenant de la documentation relative au code TIMCOAT [3], issu de la collaboration de plusieurs institutions dont l'Idaho National Laboratory (INL).

6. Références bibliographiques

MILICHE, Christel, Evolution des contraintes locales développées dans les matériaux multiphases: application au combustible MOX, Revue Scientifique des ISILF, n°20.

TIMOSHENKO S. & J.N. GOODIER, *Theory of Elasticity*, New-York, Mc Graw-Hill, 1951.

MILLER G.K., PETTI D. A., MAKI J.T., Development of an integrated performance model for TRISO-coated gas reactor particle fuel, INEEL (rebaptisé INL), Idaho, 2002.