

Chapitre 6

Recherches sur les accidents de dénoyage des piscines d'entreposage de combustible irradié

Les réacteurs électronucléaires disposent d'une piscine, aussi appelée piscine de désactivation, dans laquelle sont entreposés les assemblages de combustible usé dans l'attente de leur transport à l'usine de retraitement, après que leur puissance résiduelle a suffisamment décréu. La piscine peut accueillir également, de façon temporaire, au cours des arrêts du réacteur, les assemblages de combustible neuf ou déjà irradié destinés à être chargés dans le cœur du réacteur préalablement à son redémarrage. La profondeur de la piscine est d'environ 12 m. Les assemblages, entreposés dans des alvéoles posés sur le fond de la piscine, sont recouverts d'environ 7 m d'eau, ce qui assure une protection suffisante des travailleurs contre les rayonnements ionisants en fonctionnement normal et en même temps constitue une réserve d'eau importante pour le refroidissement des assemblages en cas de défaillance des systèmes de refroidissement.

Une piscine de désactivation peut contenir un grand nombre d'assemblages de combustible irradié chargé de produits radioactifs (de 300 à 600 assemblages selon le type de réacteur). Elle est située dans un bâtiment (dit bâtiment combustible ou BK) dont le confinement est de type dynamique (assuré par le système de ventilation).

Les piscines du bâtiment du réacteur (BR) et du bâtiment BK sont représentées sur la figure 6.1.

En cas de défaillance des systèmes de refroidissement de la piscine, il a été considéré dans la démonstration de sûreté établie lors de la conception que, compte tenu de la

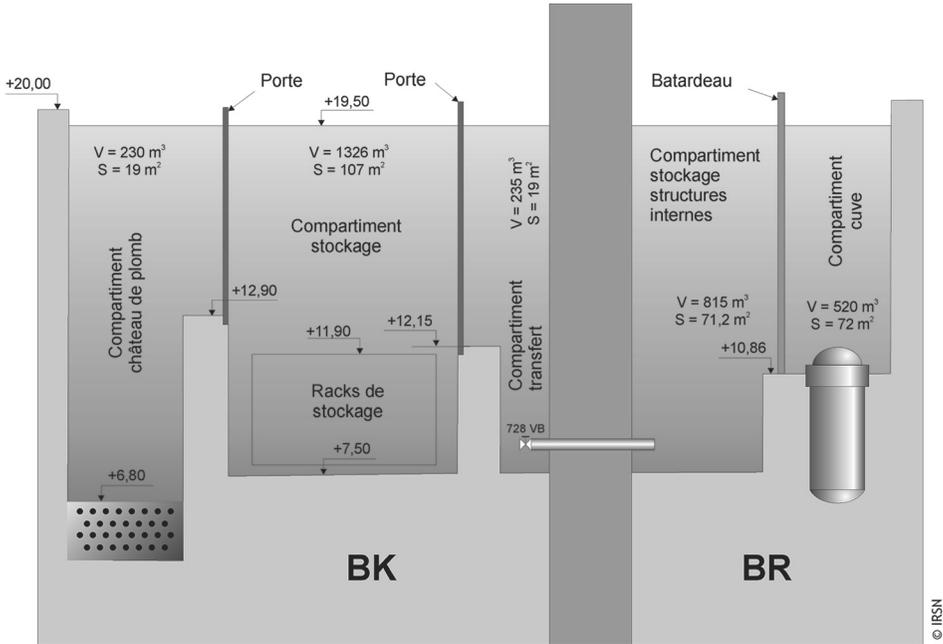


Figure 6.1. Vue en coupe des piscines du bâtiment du réacteur (BR) et du bâtiment du combustible (BK) sur un réacteur 900 MWe CPY⁴⁹. © IRSN.

faible puissance résiduelle des assemblages de combustible irradié, le délai avant le dénoyage de ceux-ci serait suffisant pour mettre en œuvre des mesures de sauvegarde. C'est pourquoi le bâtiment dans lequel elle est située ne présente pas les mêmes capacités de confinement des produits radioactifs, en cas de perte d'intégrité des crayons de combustible, que l'enceinte de confinement du réacteur.

Le risque de vidange des piscines a été prévu à la conception par certaines dispositions, telles que l'installation de dispositifs casse-siphon sur les circuits de refroidissement des piscines (PTR) ; ces dispositions ont été significativement renforcées à la suite de plusieurs incidents (perte d'étanchéité de portes et de batardeaux, vidanges induites par des erreurs de lignage, insuffisances relevées ou constat d'obturation par des corps étrangers des dispositifs casse-siphon, etc.) ou dans le cadre de réexamens de sûreté.

L'accident de Fukushima Daiichi a confirmé l'importance d'examiner toutes les stratégies possibles pour garantir le refroidissement des assemblages d'autant plus que les conditions d'exploitation des combustibles et des piscines ont évolué depuis leur conception (combustibles plus irradiés, présence de combustibles MOX).

L'effet « falaise » redouté en cas d'impossibilité d'assurer un refroidissement suffisant des assemblages est l'emballement des réactions exothermiques d'oxydation des gaines des crayons par l'air et la vapeur d'eau, conduisant à leur dégradation et à un rejet significatif

49. Deuxième palier de réacteurs nucléaires de 900 MWe (EDF).

de produits radioactifs. Si le rejet devrait contenir très peu d'iode radioactif 131, vu le temps d'entreposage des combustibles après leur déchargement du cœur du réacteur, il devrait comporter une quantité très importante de ruthénium, un élément particulièrement radiotoxique – bien que de période radioactive significativement plus faible que celle du césium (voir le paragraphe 9.4).

L'ébullition de l'eau dans certains alvéoles d'entreposage pourrait également entraîner un retour à la criticité des assemblages de combustible qu'elles contiennent, susceptible de provoquer des ruptures de crayons, l'irradiation de personnes et un rejet de produits radioactifs.

L'évaluation des risques associés aux accidents de perte de refroidissement ou de réfrigérant nécessite de modéliser des phénomènes de convection mixte (forcée et naturelle), tridimensionnels (de par la géométrie des alvéoles d'entreposage et la répartition non homogène des puissances résiduelles des assemblages de combustible usé dans la piscine), multifluides (eau, vapeur et air lors de la phase de dénoyage), ainsi que les phénomènes d'oxydation des gainages à base de zirconium en présence de mélanges de vapeur d'eau, d'oxygène et d'azote [1]. Ces réactions d'oxydation sont sources de production de chaleur et éventuellement d'hydrogène, avec un risque d'explosion associé. Des études sont également menées pour étudier l'efficacité des moyens de sauvegarde en fonction des scénarios envisagés (possibilité d'une cavitation de pompes en cas d'entraînement de vapeur ou d'air dans les circuits, efficacité de systèmes d'aspersion pour refroidir des assemblages dénoyés, etc.).

Bien que des essais réalisés dans les années 1950 aient déjà montré que les cinétiques d'oxydation du zirconium par l'air à haute température étaient très différentes de celles de l'oxydation par de la vapeur d'eau, le phénomène d'oxydation par l'air des alliages de zirconium n'a été étudié en détail que très récemment.

La réaction d'oxydation du zirconium par l'oxygène libre environ deux fois plus de chaleur (1 101 kJ/mole au lieu de 528 kJ/mole dans le cas de l'oxydation par la vapeur d'eau). Le zirconium réagit également avec l'azote. Le nitrure formé peut réagir à son tour avec l'oxygène en libérant également beaucoup de chaleur (736 kJ/mole). On comprend donc que, si les conditions sont réunies pour déclencher ces réactions chimiques (présence d'air dans les alvéoles d'entreposage et température atteinte de l'ordre de 600 °C), la chaleur dégagée pourrait provoquer l'emballement des températures et l'endommagement des crayons de combustible.

En France, l'IRSN a réalisé des essais d'oxydation sous air d'échantillons de gaine de quelques centimètres de long en Zircaloy-4 et M5TM dans le cadre de l'ISTP (*International Source Term Program* [2005–2013], série d'essais MOZART⁵⁰). La plage de températures étudiée était de 600 °C à 1 100 °C. La mesure en continu de l'accroissement de la masse des échantillons par thermogravité a permis d'établir des lois de cinétique d'oxydation qui ont été intégrées dans le logiciel de simulation ASTEC (*Accident Source Term Evaluation Code*) permettant de calculer le déroulement de l'accident.

50. Mesure de l'oxydation du zirconium par l'air en température.

D'autres essais à caractère analytique ont été réalisés à peu près à la même époque sur différents alliages aux États-Unis et en Allemagne. Ces essais différaient par la nature des alliages étudiés, la géométrie des échantillons (tronçons de gaines ouverts aux extrémités ou obturés), l'état initial des matériaux (vierges ou préoxydés et préhydrurés pour simuler les effets d'oxydation en service) et par la nature des fluides oxydants utilisés (azote pur, mélange d'azote et de vapeur d'eau ou mélange d'air et de vapeur d'eau).

Ces essais, ainsi que ceux réalisés par le Karlsruhe Institute of Technologie (KIT) en Allemagne, ont confirmé que l'oxydation des gaines par l'air pouvait avoir des conséquences beaucoup plus néfastes que l'oxydation par la vapeur d'eau. En effet, la cinétique de la réaction d'oxydation s'accélère à partir d'un certain taux d'oxydation. Il se forme d'abord une couche d'oxyde de zirconium dense qui limite le transfert par diffusion de l'oxygène vers le métal et dont l'épaisseur croît comme la racine carrée du temps (voir le paragraphe 3.2). Puis, la cinétique s'accélère encore avec la fissuration de cette couche d'oxyde dense. L'air accède alors à de nouvelles zones de métal non oxydées, et la réaction d'oxydation progresse linéairement avec le temps. Ce phénomène – appelé *breakaway* – est encore mal compris. Le changement de forme cristalline de la zircone (de monoclinique à tétragonale) vers 1 000 °C (voir le paragraphe 2.2) pourrait en être la raison. Mais une autre hypothèse a été avancée pour expliquer le rôle spécifique de l'azote et la formation de composés nitrurés denses (Zr-O-N ou ZrN), dont l'oxydation entraînerait la fissuration de la couche d'oxyde de zirconium à des températures inférieures à 1 000 °C.

Des essais intégraux ont également été réalisés par les Sandia National Laboratories aux États-Unis. Il s'agissait du programme dénommé *Spent Fuel Pool Heatup and Propagation project* (2004–2006), dédié à l'étude de la dégradation d'assemblages de réacteurs à eau bouillante⁵¹. Ce programme a été suivi du programme de l'OCDE/AEN *Sandia Fuel Project* (2009–2013), dédié à l'étude de la dégradation d'assemblages de réacteurs à eau sous pression, qui a réuni 13 pays dont la France. L'objectif était de produire des données de thermohydraulique sur le refroidissement des crayons par l'air ambiant par convection naturelle en cas de perte de réfrigérant afin de valider les outils de calcul de l'accident (comme le logiciel ASTEC et une version dédiée du logiciel DRACCAR).

Le dispositif expérimental comportait un assemblage finement instrumenté de 17 × 17 crayons chauffants d'oxyde de magnésium⁵² gainés en Zircaloy, à l'échelle 1. Tout d'abord, des essais non destructifs de convection naturelle dans l'air ont été effectués. Ils ont été suivis d'un essai destructif conduit jusqu'au déclenchement de l'emballement de l'oxydation (appelé aussi feu de zirconium) et à sa propagation axiale au sein de l'assemblage. Dans une seconde campagne d'essais, l'assemblage chauffé était entouré de quatre assemblages non chauffés pour étudier la propagation radiale de l'emballement de l'oxydation à des assemblages environnants de plus faible puissance.

51. Contrairement aux assemblages de crayons des REP, les assemblages de crayons REB sont disposés à l'intérieur de boîtiers en Zircaloy.

52. L'oxyde de magnésium ne présente pas de risque radiotoxique et se rapproche de l'oxyde d'uranium par ses propriétés thermiques (conductivité, chaleur spécifique, etc.).

Certains crayons de ces assemblages non chauffés étaient également pressurisés pour simuler les effets du ballonnement (accélération possible de l'oxydation à la suite de la desquamation des couches d'oxyde formé). L'emballement s'est effectivement propagé aux assemblages périphériques. Les logiciels de simulation des accidents de fusion du cœur, tels qu'ASTEC, ont à la suite de ces recherches bénéficié d'améliorations des modèles pour pouvoir décrire ce phénomène avec suffisamment de précision.

► Programmes prévus

Afin de progresser dans la connaissance de ces phénomènes, l'IRSN, avec la participation du CNRS (les laboratoires de recherche PROMES – Procédés, matériaux et énergie solaire de Perpignan –, LEPMI – Laboratoire d'électrochimie et de physico-chimie des matériaux et des interfaces de Grenoble –, ARMINES-SPIN – Sciences des processus industriels et naturels de l'École des Mines de Saint-Étienne – et LVEEM – Laboratoire Vellave sur l'élaboration et l'étude des matériaux du Puy-en-Velay), a engagé en 2013 le programme de recherche DENOPI⁵³. Ce programme d'une durée de six ans est cofinancé par l'ANR dans le cadre des investissements d'avenir, et plus particulièrement de l'appel à projets de recherche en matière de sûreté nucléaire et de radioprotection (RSNR), lancé en 2012 à la suite de l'accident de Fukushima Daiichi.

Le projet DENOPI prévoit la réalisation d'expérimentations ainsi que des travaux de modélisation et de validation de logiciels de simulation pour approfondir les connaissances relatives aux différentes phases d'un accident de perte de refroidissement ou de dénoyage accidentel d'assemblages de combustible entreposés en piscine de désactivation. Il est bâti sur une approche analytique qui vise à développer les connaissances selon les trois axes suivants :

- le refroidissement par convection naturelle à l'échelle de la piscine,
- le comportement thermohydraulique à l'échelle d'un assemblage de combustible en cas de dénoyage et l'efficacité d'une aspersion,
- les mécanismes d'accélération de l'oxydation des gaines du combustible en présence d'un mélange d'air et de vapeur d'eau.

La convection naturelle dans la piscine sera étudiée (2015–2017) grâce à la réalisation d'une maquette au 1/5^e d'une piscine de désactivation, des alvéoles d'entreposage et des assemblages qu'elles peuvent contenir. Une simulation numérique utilisant des outils de calculs avancés (*Computational Fluid Dynamics*, résolvant les équations régissant les mouvements d'un fluide avec grande précision) sera également élaborée pour interpréter les résultats observés.

L'étude du comportement thermohydraulique d'un assemblage mettra en œuvre en 2018–2019 une maquette expérimentale à l'échelle 1 d'un assemblage de combustible et de son alvéole d'entreposage dans des conditions représentatives des différentes phases de l'accident, à savoir la perte de refroidissement, l'ébullition de l'eau de la piscine, le

53. Dénoyage accidentel de piscine d'entreposage de combustible nucléaire.

dénoyage et la reprise du refroidissement. Des mesures de vitesse des fluides dans les espaces situés entre les crayons ainsi que des concentrations d'oxygène permettront de constituer une base de données expérimentales très précises pour la validation des modèles utilisés pour calculer le déroulement de l'accident.

Les phénomènes d'oxydation des gaines et leur emballement, ainsi que le rôle présumé des nitrures seront étudiés grâce à des techniques de laboratoire très performantes :

- la diffraction des rayons X (DRX) *in situ* sous flux gazeux riche en vapeur d'eau permettra de suivre, en temps réel et à la température de la réaction, l'évolution des composés formés à haute température (500 °C à 1 200 °C) ;
- l'imagerie micro-Raman permettra d'étudier la microstructure et la composition de la couche d'oxyde de zirconium formée.

Il est également envisagé de réaliser des essais intégraux sur des assemblages de combustible simulés dans l'installation QUENCH de KIT dans le cadre du programme SAFEST (*Severe Accident Facilities for European Safety Targets*) financé en partie par l'Union européenne.

Enfin, l'IRSN coordonne le projet AIR-SFP (2015–2017) cofinancé par l'Union européenne, à la suite d'un appel à projets de recherche lancé dans le cadre de NUGENIA+⁵⁴. Il s'agit d'évaluer les capacités de différents logiciels de simulation d'accident de fusion du cœur de réacteur, tels que le logiciel ASTEC, à prédire le déroulement d'un accident de dénoyage d'une piscine de désactivation et d'élaborer un programme de recherche visant à combler les lacunes de connaissance les plus importantes. Quatorze pays participent à ce projet dont les résultats permettront de faire progresser la connaissance sur le déroulement de tels accidents pour renforcer la prévention et les moyens d'en limiter les conséquences.

Référence

- [1] Status Report on Spent Fuel Pools under Loss-of-Coolant Accident Conditions. Nuclear Safety NEA/CSNI/R(2015)2, May 2015.

54. NUGENIA+ gère la recherche pour le développement et la sûreté des réacteurs électronucléaires de générations II et III pour le compte de l'association NUGENIA (voir le chapitre 1). Cette association regroupe plus d'une centaine de membres, industriels, exploitants, organismes techniques de sûreté et laboratoires de recherche, principalement en Europe.