



**HAL**  
open science

# Fission product release from corium during core concrete interaction (nuclear reactor core melting accidents)

Gregory Nicaise

## ► To cite this version:

Gregory Nicaise. Fission product release from corium during core concrete interaction (nuclear reactor core melting accidents). DSR/SAGR/2009-26, IRSN - Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire. 2009. hal-04258575

**HAL Id: hal-04258575**

**<https://hal.science/hal-04258575>**

Submitted on 3 Nov 2023

**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.

Copyright

**IRSN**INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

# Relâchement des produits de fission depuis le corium en accident grave.

## Phénoménologie et évaluation à l'aide du code MFPR

RAPPORT DSR/SAGR N° 26  
RAPPORT EPS2/REP1300/NS2-09-05  
Avril 2009

DIRECTION DE LA SURETE DES REACTEURS  
SERVICE D'EVALUATION DES ACCIDENTS GRAVES ET DES REJETS  
RADIOACTIFS



Système de management  
de la qualité IRSN certifié

Demandeur	Projet EPS2
Référence de la demande	
Numéro de la fiche programme	11000143 (R&D terme source)
Processus de rattachement	R4

### Relâchement des produits de fission depuis le corium en accident grave. Phénoménologie et évaluation à l'aide du code MFPR

**Grégory NICAISE**

Bureau de Physique des Accidents Graves (DSR/SAGR/BPhAG)

Rapport DSR/SAGR n°26

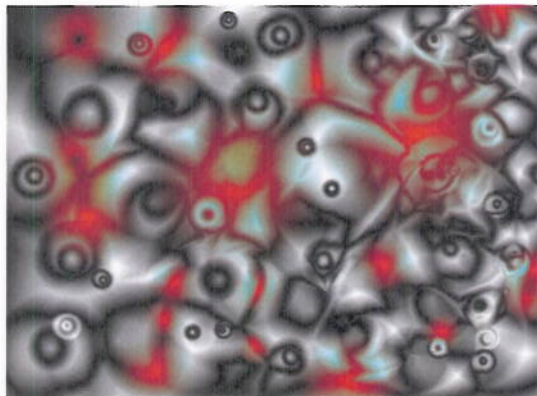



Illustration : « Les créatures du feu » Grégory Nicaise 2008, œuvre numérique

	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur	Chef du DSR/SAGR/BPhAG	Chef du DSR/SAGR	Directeur de la sûreté des réacteurs
Noms	G. NICAISE (DSR/SAGR)	R. DUBOURG (DPAM/SEMIC)	<del>C. CAROLI</del> R. REIGNAULT	F. PICHEREAU	M. JOREL
Dates	15/01/2009	06/03/2009	15.05.09	15.05.09	18/5/09
Signatures					

DIFFUSION : Libre  Interne  Limitée

Demandeur	Projet EPS2 / REP 1300		
Référence de la demande	Projet EPS2/REP 1300. Fiche Affaire FA-PF4-A		
Numéro de la fiche d'action	11000143		
<p><b>Relâchement des produits de fission depuis le corium en accident grave. Phénoménologie et évaluation à l'aide du code MFPR</b></p> <p><b>Grégory NICAISE</b></p> <p>Bureau de Physique des Accidents Graves (DSR/SAGR/BPhAG)</p> <p>Rapport DSR/SAGR n° 26</p> <p>Rapport EPS2/REP1300/NS2-09-05</p>			
	Autorisation d'Emission	Vérification	Autorisation de Diffusion
	<b>Chef du projet EPS2 / REP 1300</b>	<b>Président du comité de relecture</b>	<b>Président du comité directeur</b>
Noms	E. RAIMOND		
Dates	23/06/09		
Signatures			

---



---

## HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Auteur	Pages ou paragraphes modifiés	Description ou commentaires
0	07/01/2008	G. NICAISE		
1	06/04/2009	G. NICAISE		
2	29/04/2009	G. NICAISE		
3	11/05/2009	G. NICAISE		

---



---

## LISTE DE DIFFUSION

Nom	Organisme
MM. Jorel, Bruna	IRSN/DSR
Mme Pichereau, M. Raimond	IRSN/DSR/SAGR
Mme Tenaud, MM. Caroli, Meignen, Nicaise	IRSN/DSR/SAGR/BPhAG
M. Dubreuil	IRSN/DSR/SAGR/BAAGR
Mme. Rahni, MM. Baichi, Denis	IRSN/DSR/SAGR/BEPAG
MM. Vola, Dubourg, Barrachin, Cranga	IRSN/DPAM/SEMIC/LETR
Circulation interne	IRSN/DSR/SAGR/BPhAG

---

---

## RESUME

Ce rapport présente une évaluation du relâchement des Produits de Fission (PF) lors de la formation du corium en cuve et lors de son interaction hors cuve avec le béton du radier (ICB), en cas d'accident grave avec fusion totale du cœur et percée de la cuve.

Une première étude quantitative a été menée en 2003 [BAICHI 2003] à l'aide du code GEMINI2 couplé à la base de données thermo-chimique « TDBCR001 » et concernait les PF Ba, La, Ru et Sr (pas d'autres PF dans la base de données considérée). Elle concluait que le PF le plus relâché est le baryum (3.07% de l'inventaire corium), et montrait une sensibilité du relâchement, pour les tous PF considérés, à la quantité de Zr non oxydé introduit dans le corium ainsi qu'à l'atmosphère régnant au-dessus du corium.

L'évaluation proposée ici repose sur une utilisation spécifique du code MFPR (Module of Fission Product Release) et de son solveur thermo-chimique. L'utilisation du code MFPR est ici préférée en première instance à celle de GEMINI2 en raison de l'exhaustivité des PF qui y sont considérés. Le but premier est de comparer aux résultats donnés par l'expérience et surtout d'observer si certains PF, non introduits dans les expériences, sont sensibles au phénomène de relâchement en cours d'ICB (cas de l'antimoine).

**Les résultats obtenus sont conformes à l'expérience : les PF susceptibles d'être relâchés en cours d'ICB sont le molybdène (relâchement de ~10% de l'inventaire corium), le baryum (~4%), le strontium (~2.5%) et l'antimoine (~6%).**

---

---

## ABSTRACT

The present study aims to evaluate the release of Fission Products (FP) during corium formation and Molten Core Concrete Interaction (MCCI), in case of severe accident with full core melting and vessel failure.

A first study was achieved in 2003 [BAICHI 2003] using GEMINI2 code coupled with the « TDBCR001 » thermochemical database and was regarding Ba, La, Ru and Sr fission products (no more in this database). It was found that the FP that is released the most is barium (3.07% of the corium inventory), with a sensibility for all PF to the non-oxysed Zr fraction introduced into corium, and to the corium surrounding atmosphere.

The evaluation lies on a specific use of MFPR code (Module of Fission Product Release) and its thermo-chemical solver, although their validation was done for solid fuel geometry. MFPR code was preferred to more adequate ones (in terms of modelisation) due to its complete FP database. The first aim is to compare calculation to experiments and to search for some FP able to be released but not considered experimentally during MCCI tests (case of antimony).

**The computation results conform to experiments: FP that may be released are molybdenum (release up to ~10% of corium inventory), barium (~4%), strontium (~2.5%) and antimony (~6%).**

---

---

## MOTS-CLES

PRODUITS DE FISSION, CODE DE CALCUL MFPR, ESSAIS ACE, INTERACTION CORIUM-BETON, TERME SOURCE, THERMOCHIMIE

# SOMMAIRE

<b>1 INTRODUCTION .....</b>	<b>7</b>
<b>2 EVIDENCES EXPERIMENTALES : LES ESSAIS ACE .....</b>	<b>9</b>
2.1 RESULTATS DE L'ESSAI ACE L8 .....	9
2.2 ANALYSE RAPIDE .....	10
<b>3 LE SOLVEUR THERMOCHIMIQUE DU CODE MFPR .....</b>	<b>10</b>
<b>4 CALCULS .....</b>	<b>11</b>
4.1 CALCUL DE LA PHASE D'IRRADIATION .....	12
4.2 PHASE DE RELACHEMENT ET DISTRIBUTION CHIMIQUE DES PF .....	16
4.3 FORMATION DU CORIUM .....	18
4.3.1 Interaction $UO_2$ -Zr- $ZrO_2$ .....	18
4.3.2 modelisation MFPR .....	21
4.3.3 Considération du fer introduit .....	25
4.4 RELACHEMENT DES PF LORS DE L'ICB .....	27
<b>5 SYNTHÈSE .....</b>	<b>31</b>
<b>REMERCIEMENTS .....</b>	<b>31</b>
<b>REFERENCES .....</b>	<b>32</b>
<b>LISTE DES FIGURES .....</b>	<b>35</b>
<b>ANNEXE: JEUX DE DONNEES MFPR .....</b>	<b>36</b>

# 1 INTRODUCTION

La physique du phénomène de relâchement des Produits de Fission (PF) depuis le combustible nucléaire en situation accidentelle est de mieux en mieux maîtrisée dans la communauté scientifique et notamment à l'IRSN dont l'engagement fut et reste important en terme de moyens expérimentaux, d'analyse et de modélisation. Les campagnes d'essais VERCORS [Ducros 2001] et PHEBUS [Dubourg 2005] ont permis de franchir certaines étapes décisives pour la connaissance du phénomène ainsi que sa transposition aux situations pouvant être rencontrées à l'échelle du réacteur. En termes de modélisation, deux outils ont été développés à l'IRSN :

- le module ELSA qui traite de manière simplifiée le relâchement prenant en compte seulement, pour 3 classes de PF, le phénomène dominant,
- le code MFPR qui décrit de manière détaillée le comportement des PF et de la microstructure dans le combustible  $UO_2$  irradié, depuis les situations de fonctionnement normal jusqu'aux situations d'accident grave [Veshchunov 2006].

Nous proposons dans ce document une quantification du phénomène de relâchement des PF lors de la formation du corium en cuve et d'une éventuelle Interaction Corium-Béton (ICB), en situation d'accident grave avec fusion complète du cœur. Jusqu'à présent, ce phénomène, relativement difficile à appréhender expérimentalement, a été considéré comme peu significatif vis à vis des enjeux de sûreté. En effet, les PF sont majoritairement relâchés en cuve lors de la dégradation du cœur. Les températures atteintes sont alors de l'ordre de 2800K, ce qui est largement suffisant pour relâcher la totalité des gaz rares, de l'iode et du césium qui sont les PF qui contribuent le plus au terme source en accident grave, à court et long termes.

Néanmoins, le relâchement des PF n'est pas uniquement fonction de la température mais aussi de la physico-chimie particulière relative au système  $[UO_2-PF-O]$ . Cette physico-chimie dépend très sensiblement du potentiel d'oxygène du système. En outre, les propriétés thermodynamiques du système  $[UO_2-PF-O]$  sont amenées à changer quand le cœur combustible  $UO_2$  fondu se mélange aux autres éléments de structure du cœur, notamment le fer et le zirconium, pour former le corium. L'introduction de fer ou de zirconium non oxydé dans le système  $[UO_2-PF-O]$  amène un abaissement important du potentiel d'oxygène, ce qui peut favoriser le relâchement de certains PF (comme le baryum par exemple). Par ailleurs, si l'on peut ainsi penser que la température du corium ne peut que décroître lors de la phase d'ICB, les grandes quantités de vapeur d'eau et de dioxyde de carbone libérées par l'érosion du béton peuvent amener une suroxydation du corium, et par la même un relâchement d'autres PF (comme le molybdène par exemple) qui n'aurait pas eu lieu en cuve. Ainsi la formation du corium et l'interaction corium-béton peuvent être source d'un relâchement significatif s'ajoutant à celui obtenu pendant la dégradation du combustible.

Ces deux derniers constats justifient le fait que les connaissances sur le relâchement des PF depuis le combustible ne sont pas strictement applicables au corium. Nous cherchons donc ici à évaluer les phénomènes de relâchement lors de la formation du corium en cuve et lors de son interaction hors



cuve avec le béton. Compte tenu des enjeux de sûreté (assez limités) associés à cette problématique, le but de ce rapport n'est pas de parvenir à une modélisation fine, mais de vérifier que les taux de relâchement issus des expériences peuvent être conformes à une situation réaliste en accident grave. Par ailleurs une sensibilité à certains paramètres clés est analysée (état d'oxydation des gaines notamment). Enfin, il sera possible de proposer des taux de relâchement pour les PF non étudiés par l'expérience (Sb notamment).

Afin de traiter la problématique du relâchement des PF depuis le corium, nous proposons une utilisation spécifique du code MFPR, en dehors de son domaine de validation habituel. Ce code de calcul est en effet développé à la base pour étudier le relâchement depuis un combustible en géométrie intacte, en résolvant les équations de transport/diffusion sont résolues en phase solide conjointement avec la détermination de l'état thermochimique du système.

La présente étude devra ainsi nécessairement être complétée et comparée à des calculs réalisés à l'aide du code GEMINI2 dont la représentativité est adéquate pour traiter du problème de la thermochimie en phase liquide pure et dont les données thermochimiques sont probablement plus actuelles que celles du code MFPR. En fait, l'avantage majeur de MFPR qui est exploité dans le présent rapport est l'exhaustivité des PF pris en compte. La récente base de données MEPHISTA couplée au code GEMINI est plus précise (en termes de modélisation pour une solution liquide non-idéale) mais ne contient pas autant de PF que celle de MFPR.

Notons enfin qu'une première étude quantitative a été menée en 2003 [BAICHI 2003] à l'aide du code GEMINI2 couplé à la base de données thermochimique « TDBCR001 ». Le relâchement des PF Ba, La, Ru, et Sr y était calculée pour diverses composition initiales du corium (sensibilité notamment à la quantité de Zr non-oxydé), ainsi que sous diverses atmosphères (réductrice, neutre, oxydante).

## 2 EVIDENCES EXPERIMENTALES : LES ESSAIS ACE

### 2.1 RESULTATS DE L'ESSAI ACE L8

Le relâchement des produits de fission en situation d'ICB a été étudié expérimentalement lors des essais ACE (Advanced Containment Experiments) L1 à L8. Nous reportons ici les résultats du test L8 [THOMSON 1992] où le relâchement mesuré a été le plus important (tableau 1) :

Constituant introduit	UO <sub>2</sub>	ZrO <sub>2</sub>	Zr	ZrTe <sub>2</sub>	CaO	SiO <sub>2</sub>	BaO	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SrO	CeO <sub>2</sub>	MoO <sub>2</sub>
Masse (kg)	211.5	41.6	12	0.2	20.6	3.4	1.55	1.23	1.04	2.51	1.84
Relâchement (%)	7 10 <sup>-2</sup>	2 10 <sup>-2</sup>					1.3	4 10 <sup>-2</sup>	1.7	7 10 <sup>-2</sup>	1.8
Espèce relâchée	UO <sub>2</sub>	ZrO <sub>2</sub>					BaO	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SrO	CeO <sub>2</sub>	MoO <sub>3</sub>

Tableau 1 : composition du corium lors de l'essai ACE L8, fractions et espèces relâchées [Thomson 1992]

Lors de cet essai la température estimée du corium était de 2600K au début et 2300K à la fin. La phase de relâchement des PF a duré approximativement deux heures.

La figure 1 présente la mesure en ligne des gaz issus de l'interaction du corium avec le béton.

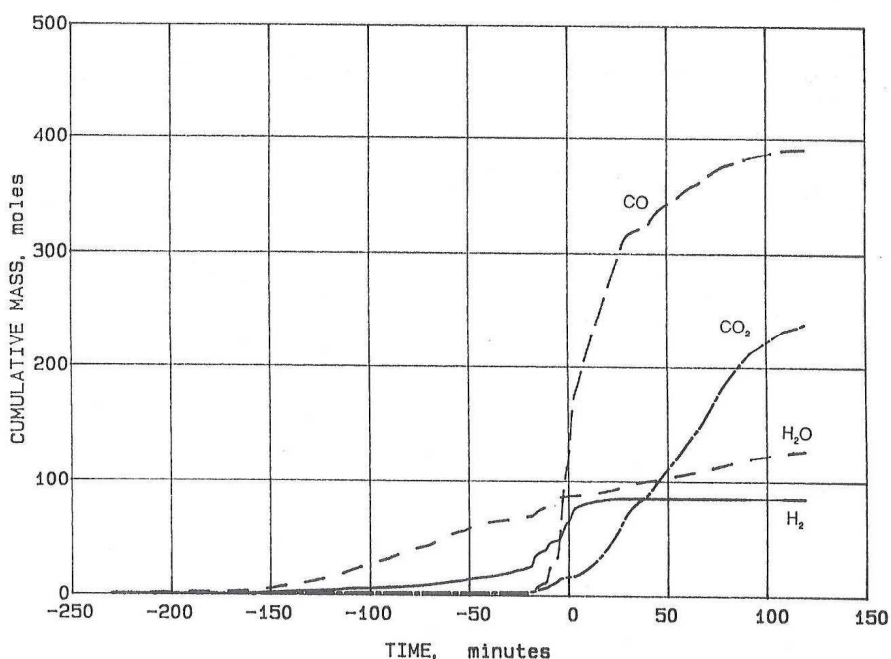


Figure 1 : quantités de gaz relâchés lors de l'essai ACE L8 [Thomson 1992]

## 2.2 ANALYSE RAPIDE

La composition du béton testé montre qu'il est de type calcaire.

Nous constatons que **les taux de relâchement sont très faibles** et les plus significatifs sont pour **Ba, Mo et Sr**. Par ailleurs, la figure 1 nous renseigne sur le fait que **l'oxydation totale du corium, dans les conditions de l'essai L8, a été atteinte**. En effet, au-delà du temps  $t=120\text{min}$ , les productions de dihydrogène (provenant de l'oxydation par la vapeur d'eau) et de CO (provenant de l'oxydation par le  $\text{CO}_2$ ) sont nulles. Nous notons également que les espèces relâchées sont présentes la même spéciation chimique que celles introduites, sauf pour le molybdène qui est relâché sous un état plus oxydé ( $\text{MoO}_3$ ) ainsi que pour le zirconium (pour les formes Zr et  $\text{ZrTe}_2$ ).

Il est donc possible de penser au premier abord que **les mécanismes de relâchement procèdent de l'établissement d'une pression partielle d'équilibre** (mécanisme purement thermochimique sans influence significative de la diffusion) pour chaque espèce au dessus du bain fondu, **avec un rôle joué par l'oxydation du bain**.

## 3 LE SOLVEUR THERMOCHIMIQUE DU CODE MFPR

Le code MFPR [Veshchunov 2006] distingue deux types de PF : les gaz rares et les PF chimiquement actifs (tous les autres). Le relâchement des gaz rares n'obéit à aucune thermochimie particulière (il peut néanmoins être modulé via le potentiel d'oxygène du combustible qui agit notamment sur leur coefficient de diffusion dans l' $\text{UO}_2$ ). Le solveur thermochimique de MFPR traite donc des PF, excepté les gaz rares. Il se présente comme illustré en figure 2 par la mise en équilibre de 5 sous-systèmes (SS1 à SS5) :

- SS1 représente la solution solide combustible, on y trouve les espèces en différentes quantités suivant leur solubilité la température et le potentiel d'oxygène,
- SS2 représente la phase séparée CsI aux joints de grains,
- SS3 regroupe les phases séparées ternaires,
- SS4 rassemble les précipités métalliques,
- SS5 est la phase gaz, en équilibre avec tous les autres sous-systèmes, et représentative de la porosité intergranulaire du combustible.

Notons que toutes les phases séparées (SS2 à SS5) sont localisées aux joints de grains, pour la modélisation.

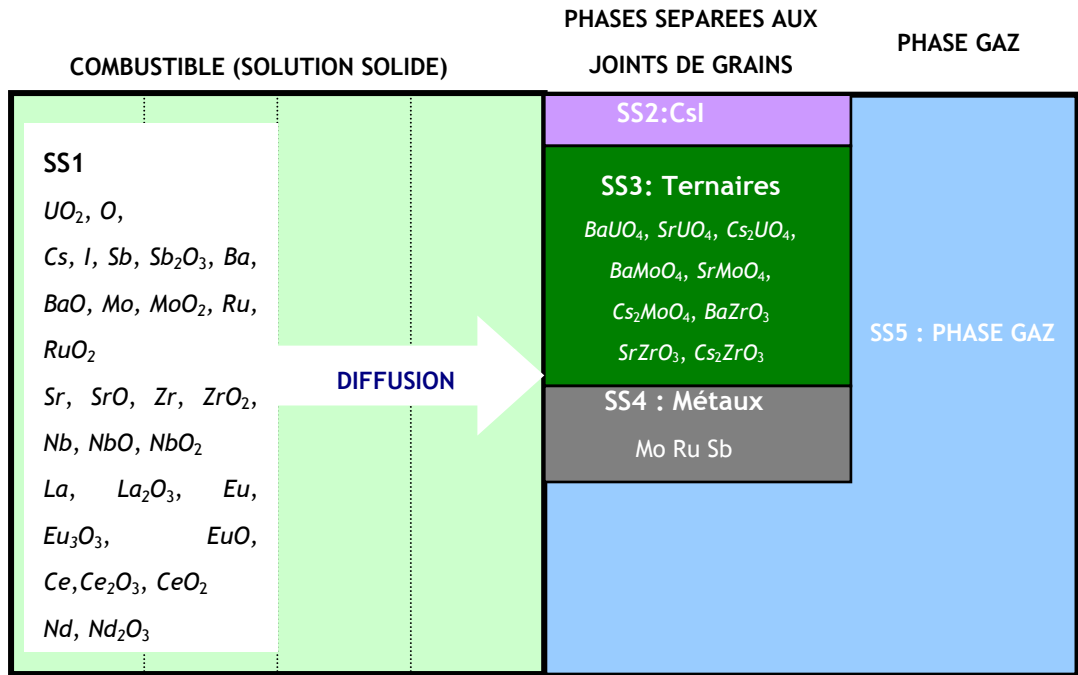


Figure 2: présentation schématique du solveur thermo-chimique de MFPR

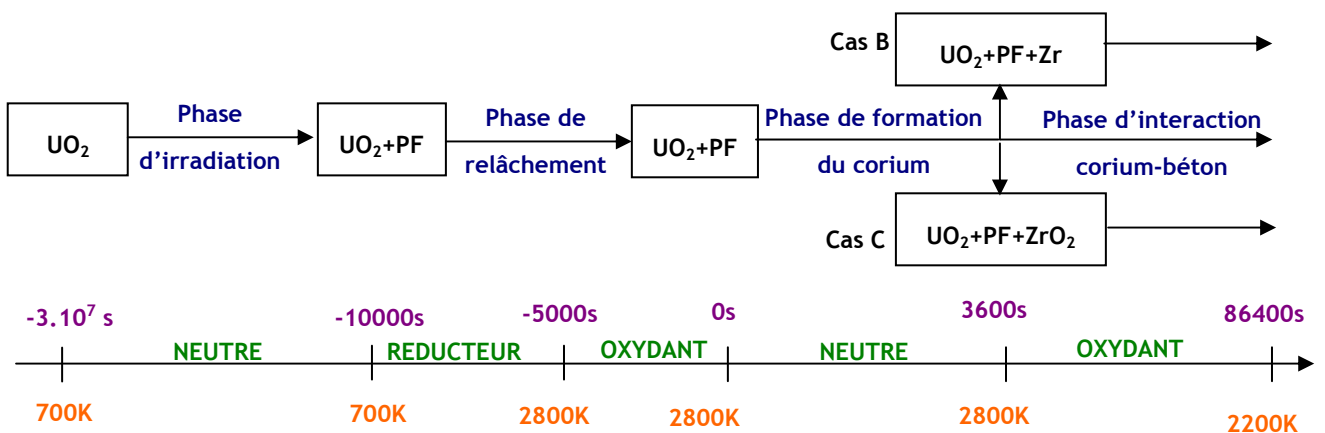
A chaque pas de temps, la distribution d'équilibre thermodynamique des PF est calculée par un algorithme de minimisation de l'enthalpie libre Gibbs ( $G=H-TS$ ) totale du système.

Notons ici la différence principale de MFPR avec les bases de données thermo-chimiques utilisées par le code GEMIN2 : dans MFPR la solution solide est considérée comme idéale, ne faisant intervenir aucun terme d'enthalpie libre d'excès.

## 4 CALCULS

La version 1.4 du code MFPR a été utilisée.

La stratégie et les hypothèses de calcul sont représentées ci-dessous :



## 4.1 CALCUL DE LA PHASE D'IRRADIATION

La première étape consiste à calculer la phase d'irradiation et la quantité de PF créée. Nous choisissons une période d'irradiation continue de  $2.999 \cdot 10^7$  s (347 jours) sous un flux de fission de  $3 \cdot 10^{19} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$  à une température moyenne de 700K. Le taux de combustion alors calculé est de 3.67% atomique soit environ 31GWj/t. La masse de combustible  $\text{UO}_2$  considérée est de 82 tonnes (représentatif d'un REP 900 MWe)

À l'issue de cette phase d'irradiation, la distribution massique du système [UO<sub>2</sub>-PF-O] calculée est la suivante (figure 3).

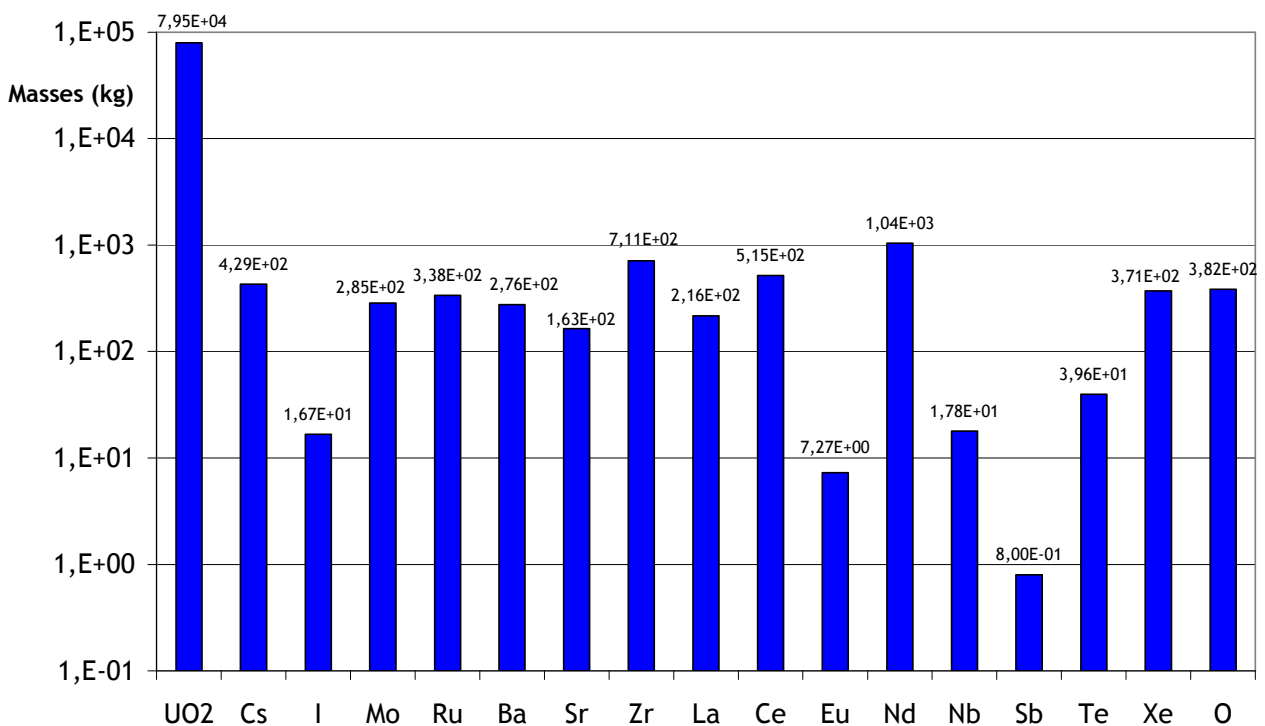


Figure 3 : calcul MFPR de la distribution massique des éléments à l'issue de la période d'irradiation

Notons que cette composition est uniquement donnée à titre d'illustration, et ne saurait être totalement représentative d'un inventaire « type » à l'AAR (Arrêt Automatique du réacteur), le code MFPR ne prenant aucune filiation radioactive en compte. En comparaison avec les données issues de [BAICHI 2004], les quantités de PF calculées ici sont légèrement surestimées.

Les rendements de fission moyens considérés dans MFPR sont les suivants :

PF	Rendement de fission	PF	Rendement de fission
Cs	0.182	Ce	0.154
I	0.011	Eu	0.002
Mo	0.248	Nd	0.303
Ru	0.142	Nb	0.008
Ba	0.084	Sb	0.0003
Sr	0.078	Te	0.026
Zr	0.326	Xe	0.241
La	0.065		

Tableau 2 : rendements de fission moyens considérés pour le calcul d'irradiation dans MFPR

La figure 4, donnée à titre d'illustration, représente la distribution molaire d'équilibre en fin d'irradiation calculée par MFPR pour Mo, Ba et Sr.

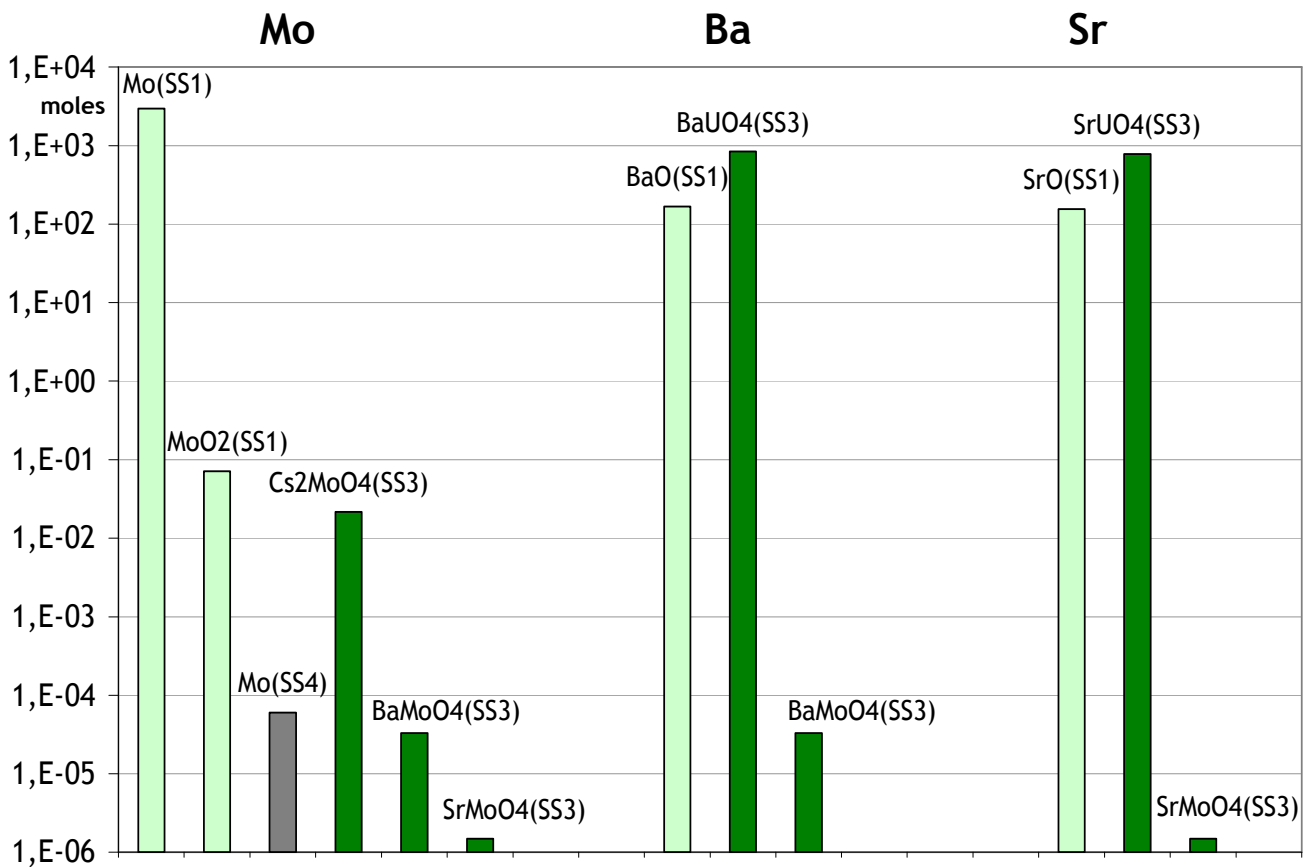


Figure 4 : calcul MFPR de la distribution molaire d'équilibre en fin d'irradiation pour Mo, Ba, Sr.

En fin d'irradiation, Mo est majoritairement localisé en solution solide, Ba est réparti entre BaO en solution solide et BaUO<sub>4</sub> en phase séparée, tout comme Sr. Notons que l'absence de Ba et Sr à l'état non oxydé en solution solide est liée au fait que MFPR utilise par défaut les coefficients d'activité  $\gamma_{Ba, BaO}=100$  et  $\gamma_{Sr, SrO}=1000$  pour des raisons expérimentales évoquées dans la littérature [Kleykamp 1985] ce qui défavorise leur solubilisation dans l'UO<sub>2</sub>. En réalité, les solubilités de ces deux PF dans l'UO<sub>2</sub> ne sont pas tout à fait nulles mais leurs mesures expérimentales présentent encore beaucoup de dispersion suivant les techniques utilisées.

L'état d'oxydation des PF à l'issue de l'irradiation est intéressant à observer. Il est nécessaire de se remémorer au préalable que l'irradiation est source d'une **oxydation interne** au sein du combustible, chaque fission libérant deux atomes d'oxygène. L'analyse du diagramme d'Ellingham présenté en figure 5 montre ainsi que les PF Sr, La et Nd sont plus facilement oxydables que l'uranium (sous la forme U<sup>4+</sup>). Ce sont ainsi les premiers consommateurs d'oxygène. Ils se comportent comme des réducteurs envers l'UO<sub>2</sub>. (réduction en UO<sub>2-x</sub>). On constate également que les potentiels d'oxydation de Ba et Zr sont très proches de celui de l'uranium. Il n'est donc pas étonnant de les retrouver à l'état totalement oxydé en solution solide (le calcul MFPR mène à 100% du Zr sous la forme ZrO<sub>2</sub> en solution solide). Par ailleurs, le calcul montre que le molybdène est peu oxydé en solution solide à l'issue de la période d'irradiation considérée (figure 4). En observant à nouveau le diagramme d'Ellingham (et la ligne en pointillés relative au potentiel d'oxygène de l'UO<sub>2,001</sub>), la non oxydation totale du Mo en solution solide implique que la surstœchiométrie  $x$  doit être nécessairement inférieure à 10<sup>-3</sup>. Le calcul MFPR donne  $x=10^{-7}$ , à l'issue de la phase d'irradiation et est donc bien cohérent avec la distribution non-oxydé/oxydé des PF en solution solide.

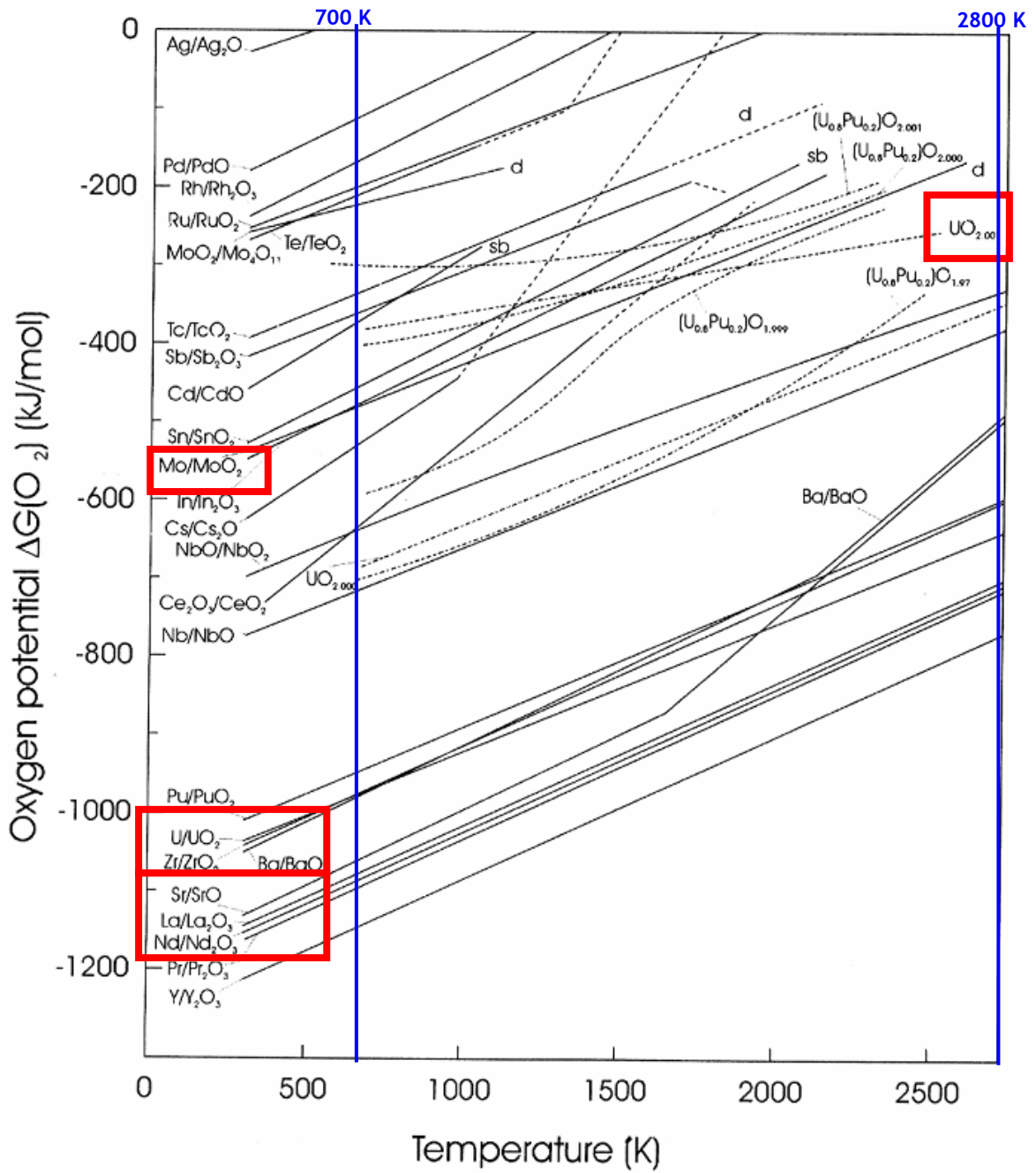


Figure 5: diagramme d'Ellingham relatif au système [UO<sub>2</sub>-PF-O]



## 4.2 PHASE DE RELACHEMENT ET DISTRIBUTION CHIMIQUE DES PF

A l'issue de la première phase d'irradiation, nous décidons d'appliquer un transitoire accidentel menant à une fusion complète du cœur. Nous considérons une montée continue de la température de 700K à 2800K pendant 5000s, puis un maintien à 2800K pendant 5000s. Au cours des 5000 premières secondes, la phase gaz externe est considérée comme réductrice ( $99.9\%H_2/0.1\% H_2O$ ), du fait de l'oxydation du Zr par la vapeur d'eau, puis lors des 5000 secondes suivantes, elle est considérée comme oxydante ( $100\%H_2O$ ).

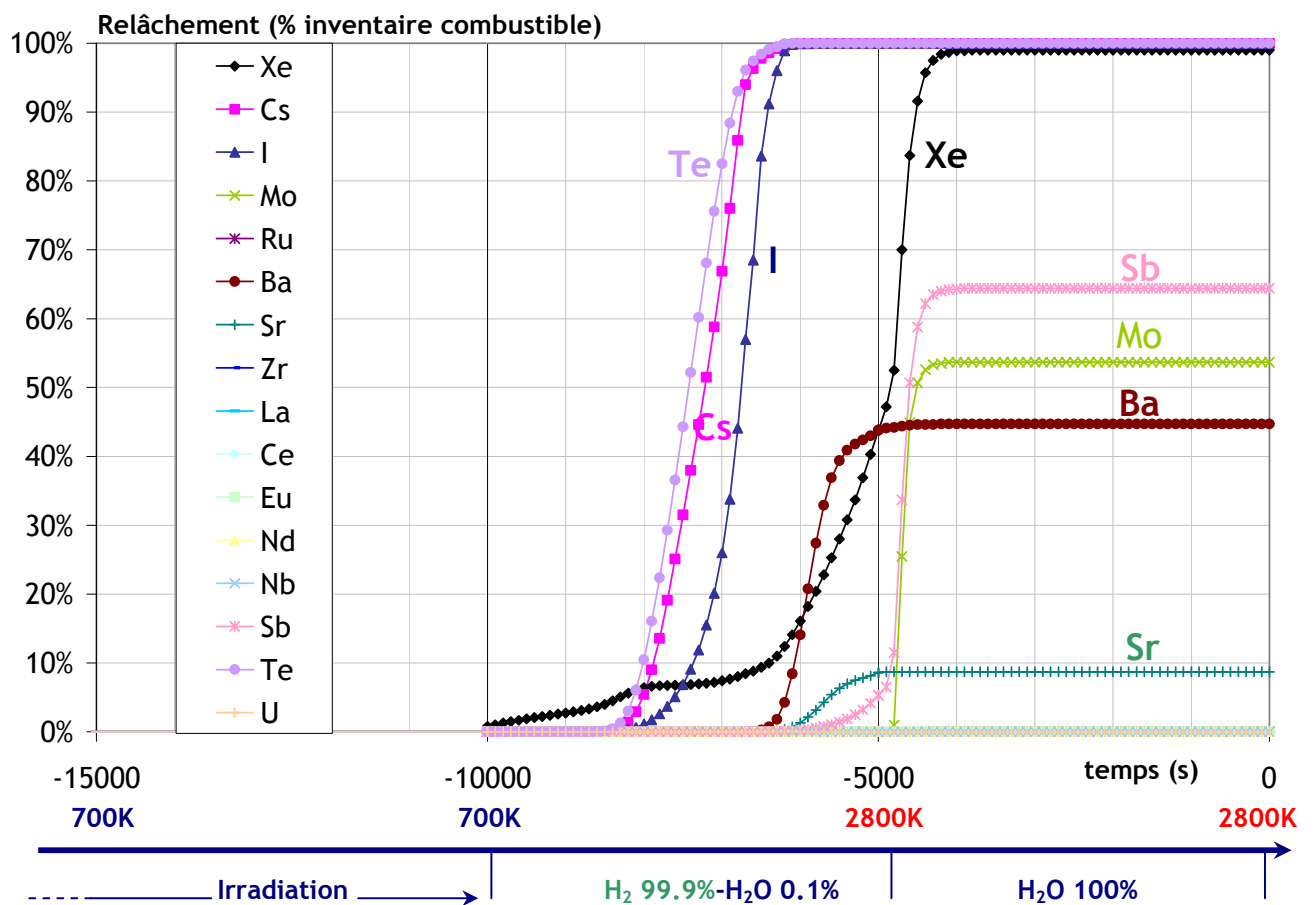


Figure 6: calcul MFPR du relâchement des PF en transitoire de température

Les résultats du calcul de relâchement présentés en figure 6 sont tout à fait conformes au cas d'une séquence de fusion complète du cœur. Le césium, l'iode, le tellure et les gaz rares sont relâchés à 100% et l'antimoine à 65% (PF dits « volatils »). Le molybdène et le baryum sont relâchés à un niveau de 50% et le strontium à 10% (PF dits « semi-volatils »). Les autres PF (dits « non volatils ») ne sont pas relâchés significativement.

Nous allons donc nous intéresser maintenant aux PF restant dans le combustible, à savoir Ba, Mo, Sb, Sr et tous les PF dits « non volatils ».

La figure 7 montre la distribution (molaire) chimique des espèces dans le combustible calculée par MFPR à l'issue de la phase de relâchement en géométrie intacte.

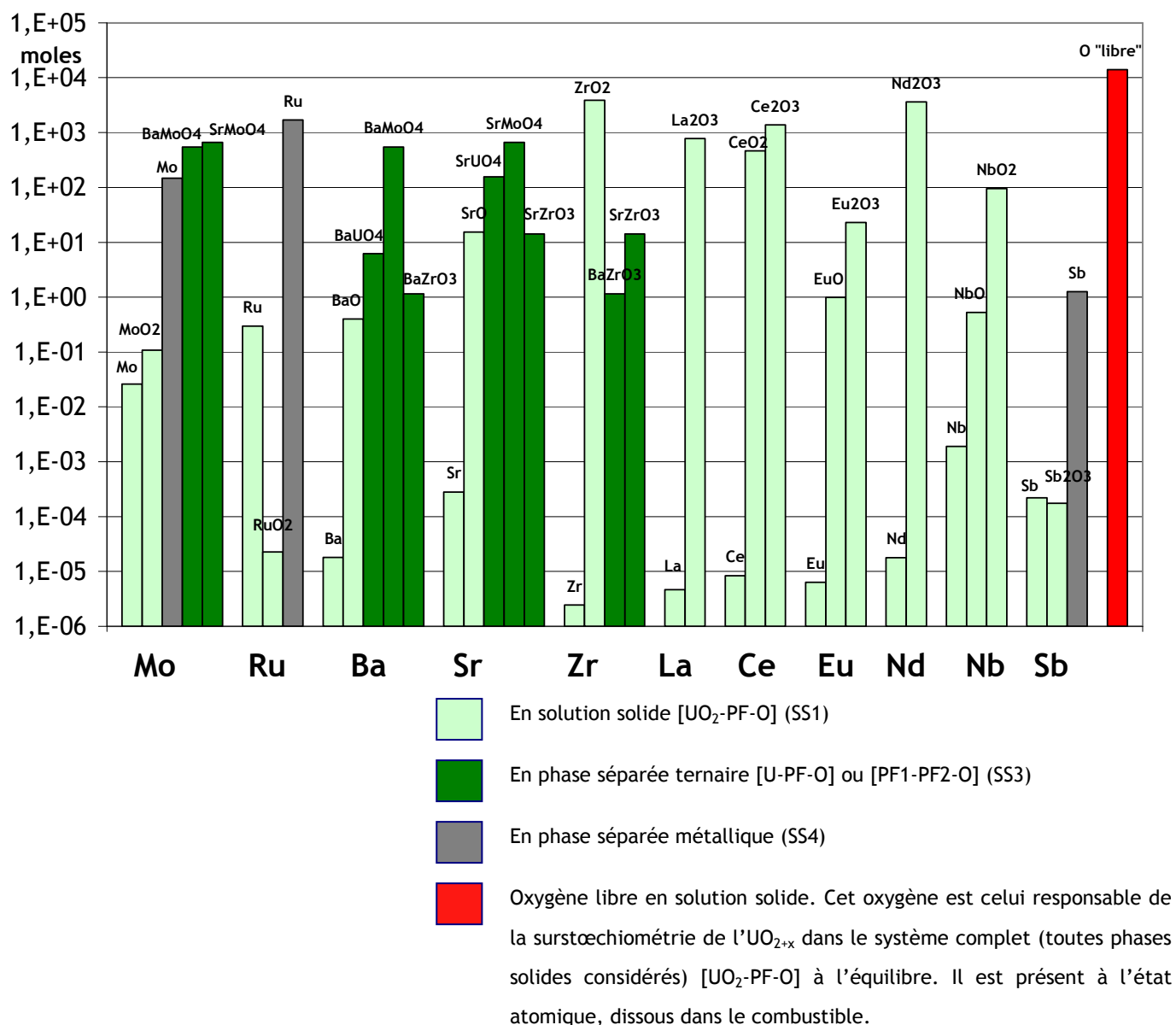


Figure 7 : calcul MFPR de la distribution chimique des PF maintenus dans le combustible à l'issue de la séquence de dégradation/fusion (situation finale à 2800K)

Les résultats donnés en figures 6 et 7 confirment en partie ceux attendus sur le relâchement des PF depuis le corium et visibles expérimentalement : pour les PF Zr, La, Ce, Eu, Nd et Nb, on ne s'attend pas à observer de relâchement significatif depuis le corium hors ou en ICB. En effet, à l'issue de la phase de relâchement depuis le combustible en géométrie intacte, ces PF se trouvent tous majoritairement à l'état oxydé et dissous en solution solide. Par ailleurs, la quantité importante d'oxygène atomique libre restant en solution solide dans le combustible montre que pour chacun de ces PF, la distribution d'équilibre obtenue entre l'état atomique et les états oxydés (exemple Ce-CeO-Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) est stable vis-à-vis d'une oxydation ultérieure (dans le cas contraire, on observerait une quantité nulle de ces PF à l'état non oxydé en solution solide). Ces PF et leurs oxydes étant par ailleurs en équilibre dans la solution solide du combustible, on ne s'attend à aucune modification particulière

de leur distribution chimique dans le combustible « fondu » que l'on assimile ici à une solution solide liquéfiée (voir de plus amples justifications au paragraphe suivant-§4.3). Néanmoins, il est nécessaire de vérifier que l'introduction de Zr issu des gaines lors de la formation du corium proprement dit ne modifiera pas radicalement ces conclusions quant à la distribution d'équilibre de ce PF et de leurs oxydes dissous.

Les autres PF à savoir Mo, Ba, Ru, Sr et Sb présentent une situation largement différente : ils se répartissent essentiellement en phases séparées, précipités ternaires ou métalliques. Le raisonnement précédent sur la stabilité ou non de la distribution d'équilibre de ces PF (dans l'intégralité du système [UO<sub>2</sub>-PF-O]) vis-à-vis d'une oxydation ultérieure (en regard de la quantité non consommée d'oxygène libre en solution solide) ne peut plus être tenu. En effet la stabilité thermodynamique de ces phases doit être revue avec la possibilité d'une re-dissolution dans le système [UO<sub>2</sub>-PF-O] liquéfié. Par ailleurs, l'introduction de Zr issu des gaines lors de la formation du corium peut déstabiliser ces phases ternaires en induisant une redistribution de l'oxygène (le Zr se comporte comme un réducteur vis-à-vis des ces phases oxydées).

Notons que la séparation faite ici (et résultant de l'analyse de la figure 7) entre les PF Zr, La, Ce, Eu, Nd, Nb d'un coté et Mo, Ba, Ru, Sr et Sb de l'autre correspond en réalité à un paramètre physique responsable de cette catégorisation : la solubilité des PF et de leurs oxydes dans l'UO<sub>2</sub> solide. Pour le premier groupe de PF cette solubilité est très largement étendue, voire quasi-totale au delà de 1700 K, pour le second groupe elle est très limitée, voire quasi-nulle. Ceci est traduit sur les résultats de la figure 7 si l'on observe la répartition des espèces de chaque PF dans les SS1, SS3 et SS4.

## 4.3 FORMATION DU CORIUM

### 4.3.1 INTERACTION UO<sub>2</sub>-Zr-ZrO<sub>2</sub>

Il importe de correctement définir le corium que nous allons étudier en terme de système chimique « receveur » des PF. Dans un premier temps, nous restreignons ici l'étude au cas du système [UO<sub>2</sub>-Zr-ZrO<sub>2</sub>-PF-O]. L'introduction d'autres éléments comme le fer issu des matériaux de structure du cœur est vue de façon qualitative au paragraphe 4.3 et pourra faire l'objet d'investigations détaillées avec les calculs GEMINI/NUCLEA.

Il est utile de rappeler au préalable les connaissances actuelles sur la formation du corium en cuve, dont la chronologie peut se révéler importante pour la suite. La formation du corium commence « tôt », c'est-à-dire lors de la phase dite de dégradation par la possibilité de plusieurs interactions solide-liquide (Zr fondu/ZrO<sub>2</sub> solide, Zr fondu/UO<sub>2</sub> solide) ou solide-solide dissolutive (ZrO<sub>2</sub>/UO<sub>2</sub>). Ces phénomènes sont identifiés dans les essais PHEBUS et VERCORS où la liquéfaction du combustible intervient en dessous de la température de fusion de l'UO<sub>2</sub> (3120K). Ils sont schématisés en figure 8,

selon que la face interne des gaines soit oxydée ou non, la face externe étant toujours oxydée en situation d'accident grave (oxydation par la vapeur d'eau). On peut également constater sur les diagrammes de phases  $\text{UO}_2\text{-Zr}$  et  $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$  en figure 9 que l'interaction  $\text{UO}_2\text{-Zr}$  abaisse considérablement le liquidus des deux côtés, c'est-à-dire pour un mélange  $\text{UO}_2\text{-Zr}$  pauvre en Zr ou pauvre en  $\text{UO}_2$  et peut se manifester dès la fusion du Zr, à savoir 2125K. L'abaissement du liquidus est moins conséquent pour l'interaction  $\text{UO}_2/\text{ZrO}_2$  mais les essais VERCORS (où la gaine est volontairement totalement oxydée lors d'un palier à 1500-1700K) tendent à montrer que le combustible perd sa géométrie 200-400K avant la température de fusion du  $\text{ZrO}_2$  (3000K), i.e. l'interaction  $\text{UO}_2/\text{ZrO}_2$  se produit par contact local solide-solide et ne nécessite pas la fusion du  $\text{ZrO}_2$ . Une interaction  $\text{Zr}/\text{ZrO}_2$  est également possible (diagramme  $\text{Zr-O}$  en figure 10) à partir de 2125K par abaissement du liquidus de  $\text{ZrO}_2$ . On pourra trouver une analyse complète de ces phénomènes au travers les travaux de [Pontillon 2005] pour les essais VERCORS, de [Barrachin 2008] pour les essais VERCORS et PHEBUS, et [Veshchunov 1997] pour les essais CORA (essais menés à FZK), qui montrent en particulier que la dissolution de l' $\text{UO}_2$  solide et du  $\text{ZrO}_2$  solide se produisent simultanément à 2125K.

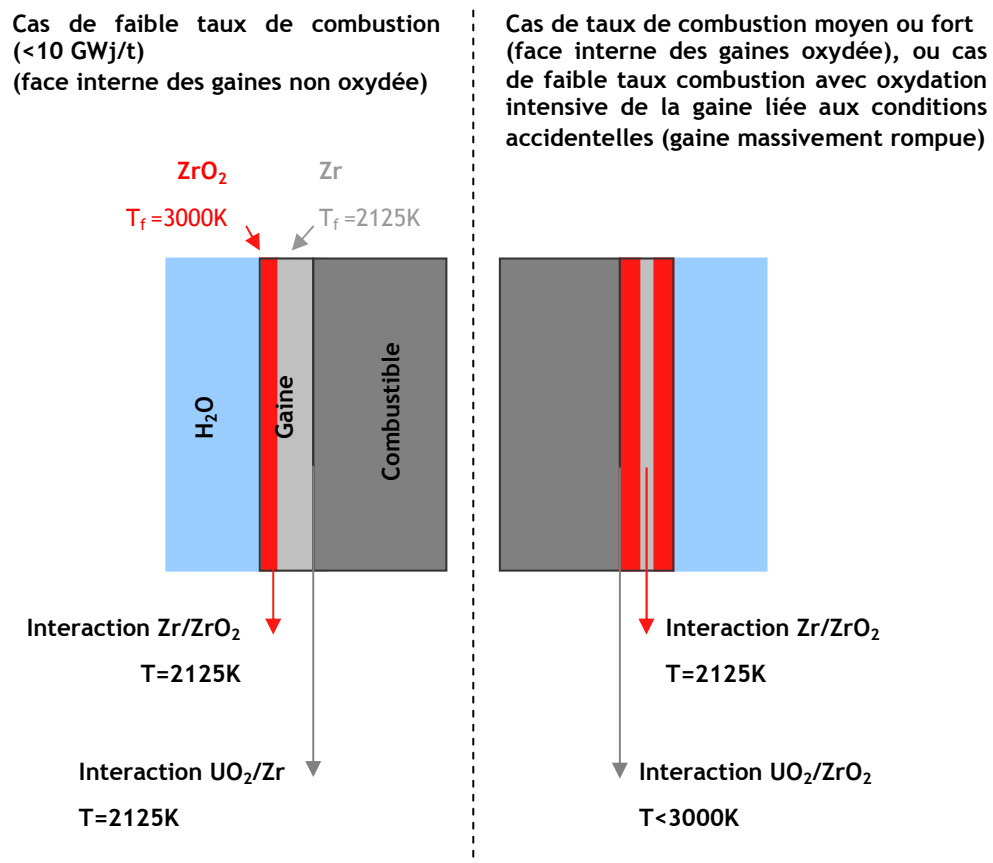


Figure 8: interactions  $\text{UO}_2/\text{Zr}/\text{ZrO}_2$  pour un crayon combustible en situation accidentelle

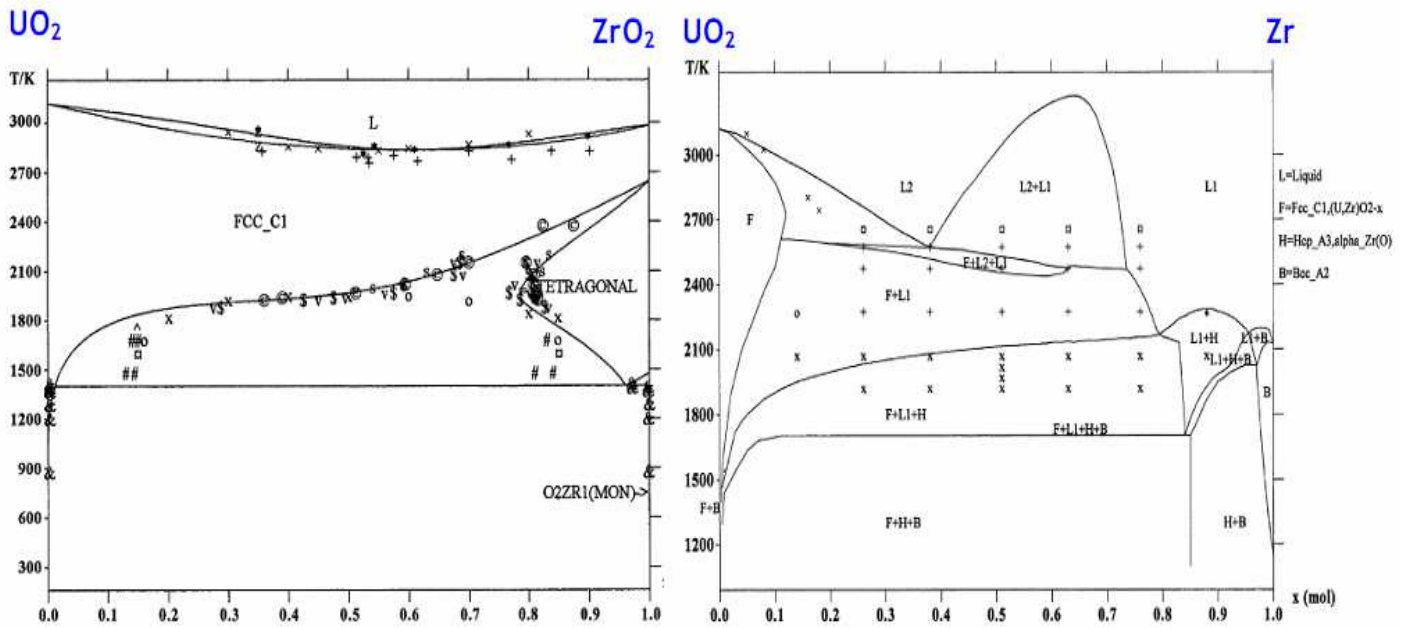


Figure 9: diagrammes de phases  $UO_2-ZrO_2$  et  $UO_2-Zr$  [Chevalier 2004]

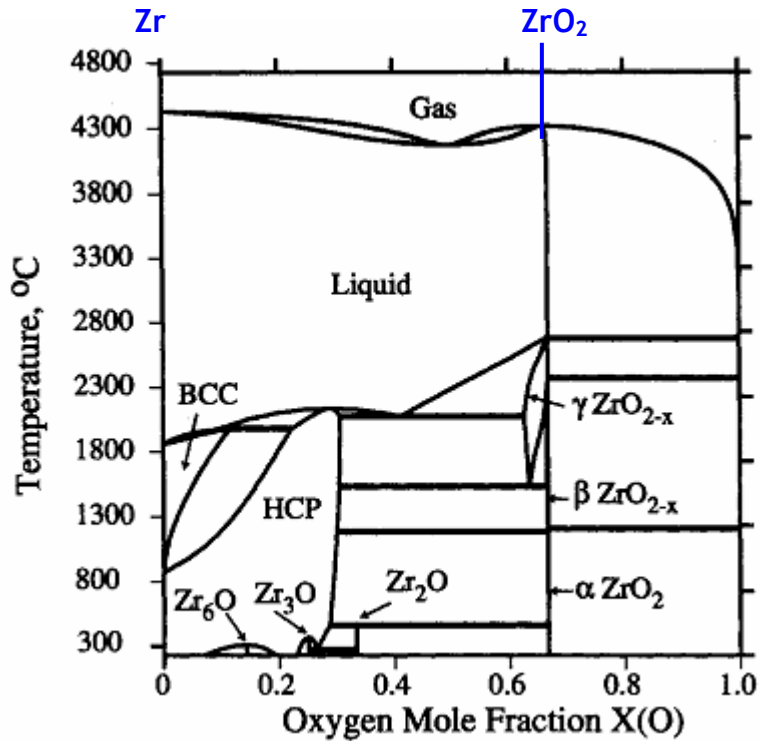


Figure 10: diagramme de phases Zr-O [Arroyave 2002]

### 4.3.2 MODELISATION MFPR

Bien que le code MFPR soit validé pour des calculs de relâchement de PF depuis l'UO<sub>2</sub> solide, le problème de géométrie intacte ou dégradée ne se pose pas pour les PF dont les mécanismes de relâchement n'obéissent pas strictement à une loi impliquant des propriétés de transport/diffusion spécifiques à l'état solide. Par exemple, pour les gaz rares, le relâchement est quasiment intégralement gouverné par des lois de diffusion impliquant l'évolution de défauts cristallins. Pour les PF dont l'interaction chimique (inexistante pour les gaz rares) avec le système [UO<sub>2</sub>-PF-O] est forte, et notamment pour ceux qui sont étudiés ici en regard de la problématique du relâchement depuis le corium, les mécanismes de relâchement obéissent prioritairement à la résultante d'équilibres thermochimiques et dans une bien moindre mesure aux propriétés de transport/diffusion. On retrouvera cette analyse du relâchement de PF chimiquement actifs depuis l'UO<sub>2</sub> solide dans [Nicaise 2005]. Ainsi le modèle même du solveur thermochimique de MFPR reste adéquat pour une géométrie dégradée, voire liquide, en apportant si nécessaire les corrections relatives aux données chimiques des PF investigués.

Nous initions ici la formation du corium par l'ajout massif de zirconium issu des gaines. A ce stade, sans adapter spécialement les données de base de chaque PF définies pour l'UO<sub>2</sub> en géométrie intacte, nous cherchons à observer l'influence du Zr introduit sur la redistribution chimique d'équilibre des espèces. D'un point de vue pratique, cette opération consiste à recalculer, à l'issue de la phase de relâchement, une phase d'irradiation virtuelle avec MFPR en fixant le rendement de fission de tous les PF à 0, sauf pour le Zr, où le rendement est fixé de sorte à ce qu'une irradiation de 3600s avec un flux de fission de  $3 \cdot 10^{19} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$  introduise une quantité de Zr correspondant à celle envisagée lors de la formation du corium en accident grave, suivant l'état d'oxydation des gaines préalable à la formation du corium. Pour introduire le ZrO<sub>2</sub>, on procède de même en fixant un rendement de fission pour l'oxygène double de celui du zirconium.

On prend ici 80 tonnes pour masse d'UO<sub>2</sub> (masse à l'issue de la période d'irradiation et de relâchement pour une masse initiale de 82 tonnes), soit **296267 moles UO<sub>2</sub>** et une masse initiale de zirconium de 19,236 tonnes soit **210868 moles Zr** (données issues de [Tenaud 2004] pour un réacteur 900 MWe).

Un cas où la totalité des gaines seraient oxydées mène à un corium de composition : (UO<sub>2</sub>)<sub>0.58</sub>-(ZrO<sub>2</sub>)<sub>0.42</sub>

Le cas (irréaliste) où les gaines seraient non oxydées mène à : (UO<sub>2</sub>)<sub>0.58</sub>-(Zr)<sub>0.42</sub>

Les calculs de distribution chimique d'équilibre sont présentés en figure 11.

---

<sup>1</sup> le temps ou le flux de fission considérés n'ont pas d'influence dans la modélisation MFPR sur l'équilibre chimique des espèces chimiquement actives- et servent uniquement à calculer la quantité de PF introduits par irradiation

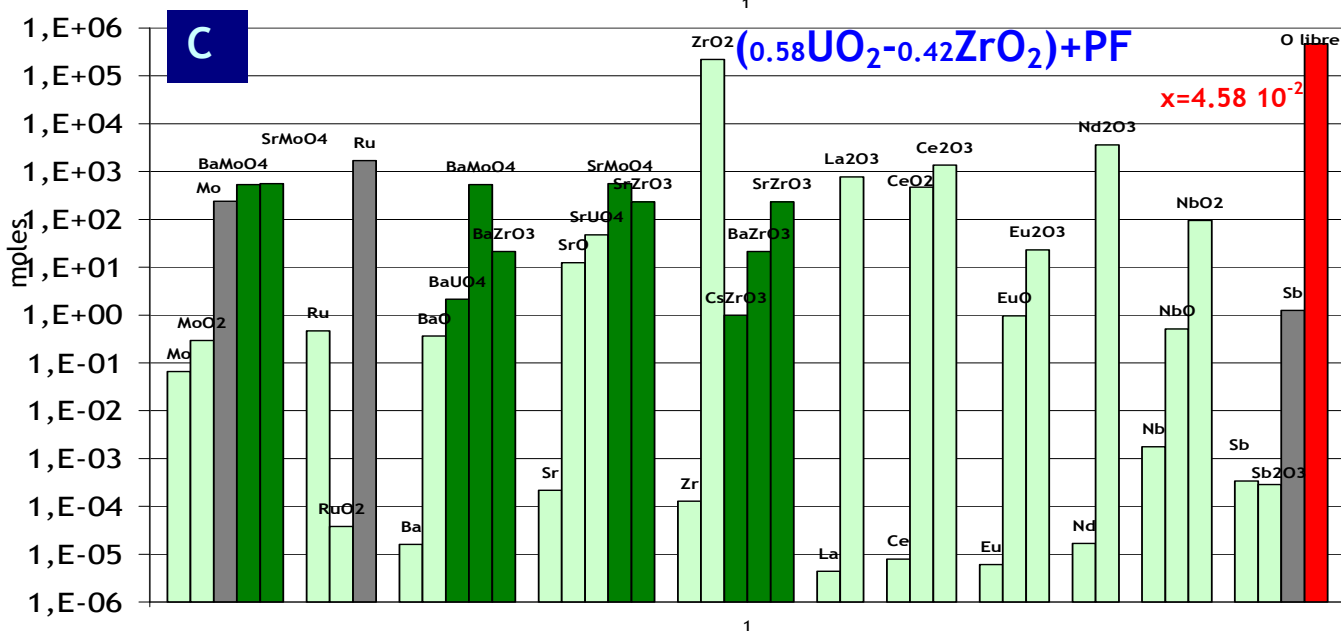
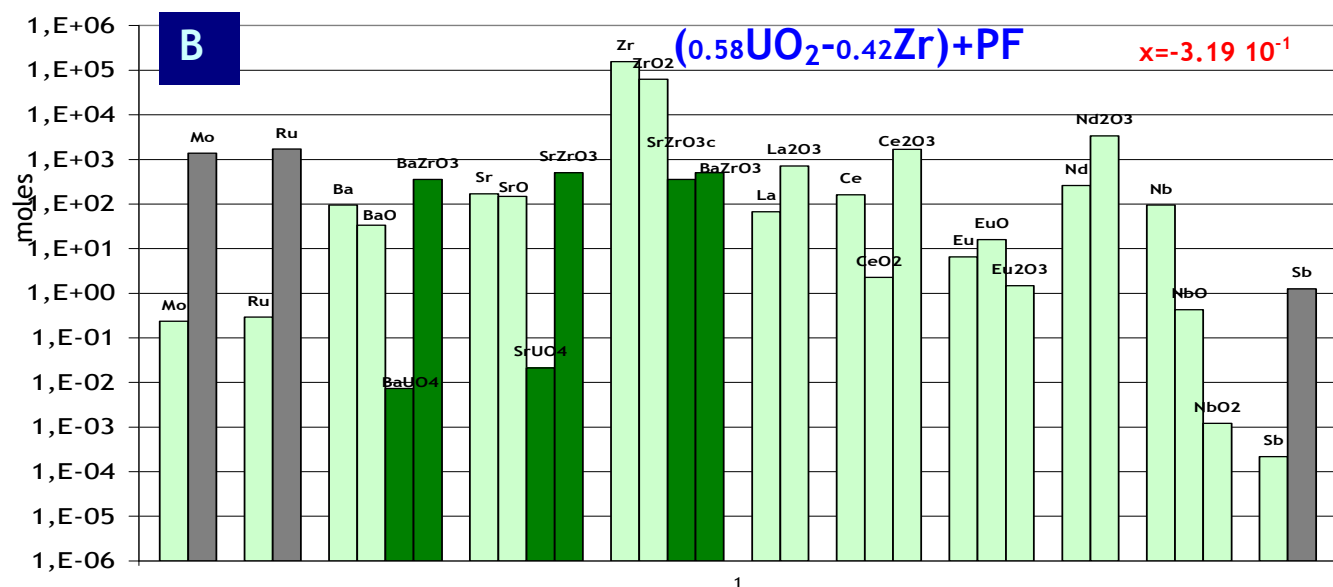
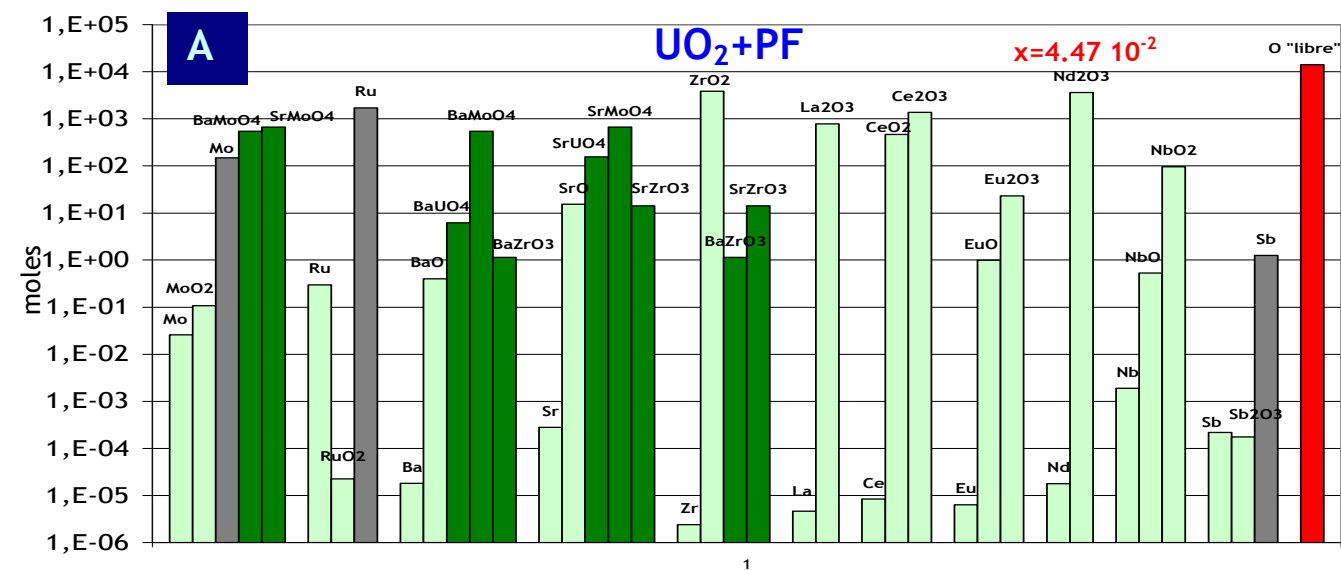


Figure 11 : distribution d'équilibre des PF dans le combustible en fin de relâchement (A), après incorporation de Zr (B) et de  $ZrO_2$  (C).  $x$  représente la sur/sous-stœchiométrie moyenne relative à  $UO_{2\pm x}$  (code couleur identique à la figure 7)

On constate en premier lieu en figure 11 et comme attendu, une modification radicale du potentiel d'oxygène du combustible et de la distribution d'équilibre PF lors de l'incorporation de Zr non oxydé (cas B). Le combustible devient fortement sous-stœchiométrique ( $x = -3.19 \cdot 10^{-1}$ ). Le molybdène, le ruthénium et l'antimoine se trouvent majoritairement à l'état métallique, le baryum et le strontium se distribuent essentiellement sous deux phases : Ba/Sr en solution solide et BaZrO<sub>3</sub>/SrZrO<sub>3</sub> en phases séparées. La distribution des terres rares est également rééquilibrée entre éléments et oxydes en solution solide.

Dans le cas d'incorporation de ZrO<sub>2</sub> (cas C), la distribution des PF est en revanche très peu impactée. Le potentiel d'oxygène (fonction directe de la surstœchiométrie  $x$ ) est tout à fait comparable au cas initial (cas A). Les calculs MFPR de pression partielle d'équilibre en O<sub>2</sub> donnent :

Avant incorporation (cas A) :  $PO_2 = 1.8 \cdot 10^{-2}$  atm

Avec incorporation de Zr (cas B) :  $PO_2 = 4.6 \cdot 10^{-12}$  atm

Avec incorporation de ZrO<sub>2</sub> (cas C) :  $PO_2 = 1.9 \cdot 10^{-2}$  atm

On obtient alors pour potentiels d'oxygène ( $\Delta GO_2 = RT \ln(PO_2)$ ) :

- cas A :  $\Delta GO_2 = -93$  kJ/mol O<sub>2</sub>
- cas B :  $\Delta GO_2 = -607$  kJ/mol O<sub>2</sub>
- cas C :  $\Delta GO_2 = -92$  kJ/mol O<sub>2</sub>

Le positionnement de ces potentiels d'oxygène (pour  $T = 2800$  K) sur le diagramme d'Ellingham en figure 12 montre que les répartitions élément/oxyde calculées par MFPR sont tout à fait conformes.

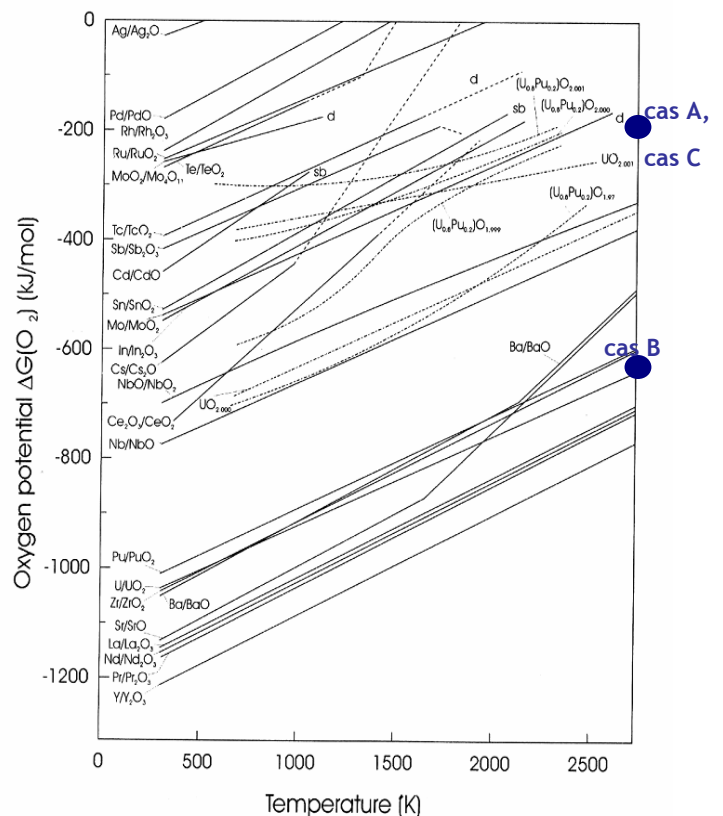


Figure 12 : potentiels d'oxygène des corium investigués (cas A : combustible, cas B : combustible + Zr, cas C : combustible + ZrO<sub>2</sub>)



La figure 13 montre les relâchements (de l'inventaire initial à l'issue de l'irradiation) calculés lors de la phase d'incorporation de Zr ou ZrO<sub>2</sub>.

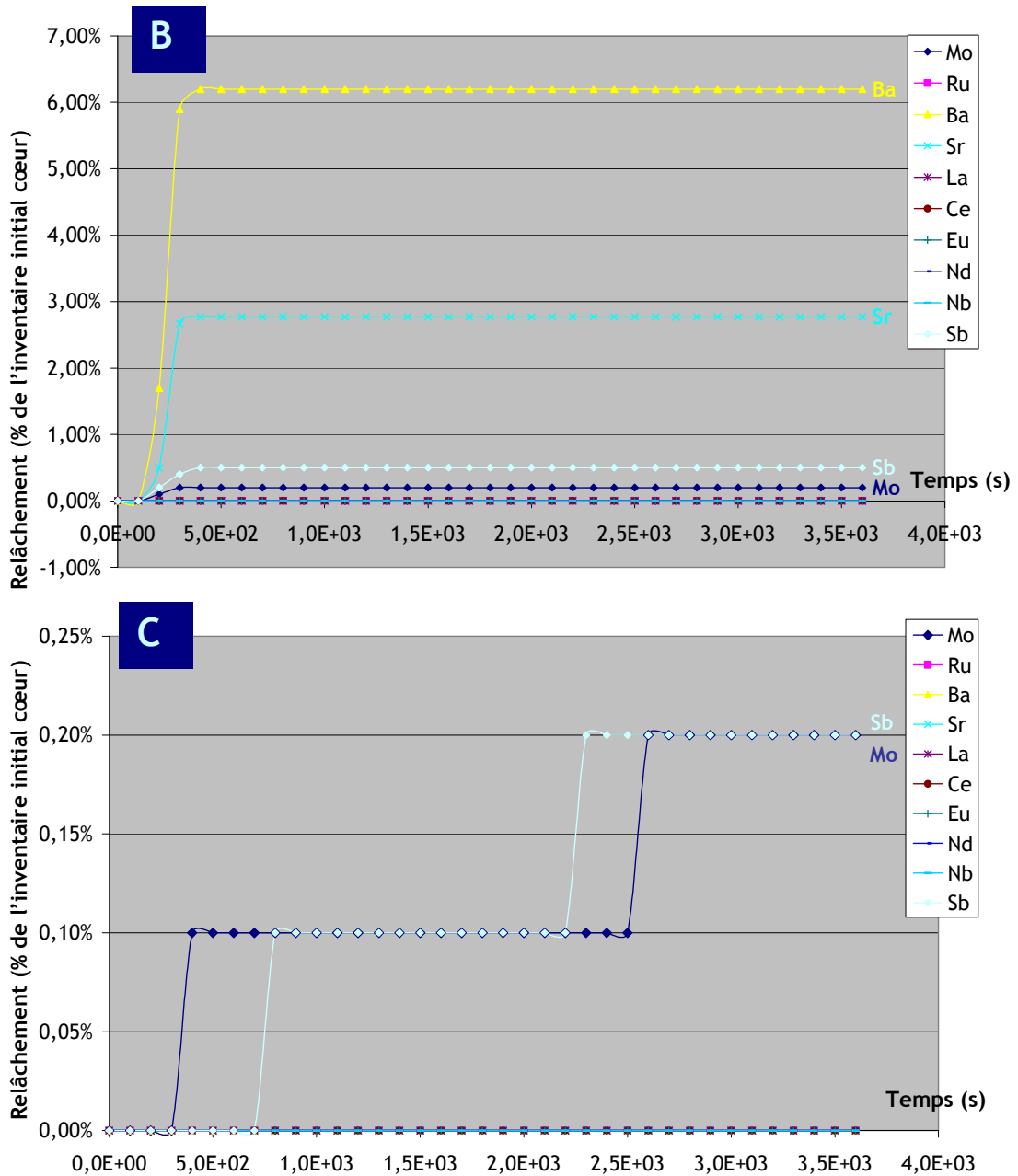


Figure 13 : relâchement des PF lors de la formation du corium  
(cas B : ajout de Zr, cas C : ajout de ZrO<sub>2</sub>)

On constate que ces relâchements sont tout à fait limités dans le cas d'incorporation de ZrO<sub>2</sub> (les marches observées en figure 13, cas C, ne correspondent pas à un mécanisme physique mais sont liées aux approximations de valeurs), mais peuvent prendre des valeurs significatives en cas d'incorporation de Zr notamment pour le baryum (6.2%) et pour le strontium (2.8%). On retrouve un résultat bien

connu sur le baryum : l'abaissement du potentiel d'oxygène du combustible tend à favoriser son relâchement (les essais VERCORS menés sous hydrogène montrent bien cet effet).

Ces relâchements lors de la formation du corium sont à comptabiliser dans le relâchement « en cuve » et sont pris en compte dans les EPS2 par l'utilisation des résultats des essais VERCORS, où l'interaction pastille gaine a été effective. Il n'y donc pas lieu de faire un retour sur les études de sûreté concernant le point spécifique du relâchement lors de la formation du corium.

Le niveau de réalisme du code MFPR est ici discutable, en regard du relâchement des PF mis en évidence en figure 13B. En effet, le zirconium a été introduit dans le calcul en solution solide, alors qu'en réalité il pénètre le combustible, lors de l'interaction  $UO_2/Zr/ZrO_2$  en cuve, par les joints de grains. Or, le coefficient de diffusion du zirconium dans l' $UO_2$  est extrêmement faible (sa solubilité étant totale, son coefficient de diffusion est du même ordre de grandeur que le coefficient d'autodiffusion de l'U dans  $UO_2$ ). Ainsi le code MFPR n'est pas approprié pour rendre compte de la présence de Zr ou  $ZrO_2$  aux joints de grains lors de l'interaction en cuve. On sait par ailleurs, au vu des faibles relâchement de baryum dans les essais PHEBUS, en regard des relâchement significatifs obtenus dans les essais VERCORS, qu'à l'échelle d'un réacteur en accident grave, le baryum est retenu aux joints de grain, très probablement piégé dans une phase  $BaZrO_3$ . Cette phase est bien prédite par le code, mais sa quantité est nécessairement sous-évaluée car la quantité de Zr calculée aux joints de grains est limitée par son coefficient de diffusion. Il serait tout à fait possible de passer cette difficulté en utilisant un coefficient de diffusion artificiel pour le Zr lors de son introduction dans le calcul par le biais de l'irradiation virtuelle. Néanmoins, ceci sort du cadre de l'étude où nous cherchons à modéliser le relâchement des PF depuis le corium formé à l'issue d'un bon mélange entre  $UO_2$  et Zr ou  $ZrO_2$ , et dont la dissolution de Zr aux joints de grains de l' $UO_2$  n'est que la phase initiatrice. En définitive, pour ce qui est de l'étude du relâchement depuis un mélange  $UO_2/ZrO_2$  considéré comme une solution idéale, l'introduction et le maintien de Zr en solution solide dans le calcul peuvent être considérés comme réaliste.

### 4.3.3 CONSIDERATION DU FER INTRODUIT

Environ 35 tonnes de fer peuvent potentiellement être incorporées au corium lors de sa formation en cuve, provenant de l'acier des internes du cœur. Le diagramme en figure 14, où la ligne de stabilité de Fe/FeO est représentée montre que dans le cas du corium C (combustible+ $ZrO_2$ ), l'introduction du fer peut induire, suivant les quantités impliquées, un abaissement du potentiel d'oxygène, et inversement pour le corium B (combustible +Zr). Il serait tout à fait possible d'introduire une certaine quantité de fer dans le calcul MFPR. Cet élément n'y est pas présent mais il suffirait d'introduire (toujours par le biais d'une irradiation virtuelle avec un rendement de fission ajusté) un élément X en lui donnant les propriétés thermodynamiques du fer. Cependant nous pouvons borner l'étude de relâchement des PF lors de l'ICB aux deux limites B et C. La ligne de stabilité de Fe/FeO passe en effet, à 2800K entre les potentiels d'oxygène de ces deux cas d'étude (figure 14). L'introduction de fer, quelle que soit sa quantité, ne peut donc faire varier la limite haute (cas C) vers le haut ni la limite basse (cas B) vers le

bas pour le potentiel d'oxygène du corium considéré. Ce raisonnement n'est toutefois valable que si le fer introduit constitue une phase « homogène » avec le corium, assimilable à une solution idéale, ou tout au moins régulière. En cas de démixtion Fe/(U,Zr)O<sub>2</sub> par exemple et donc de stratification du corium, il faudrait très précisément étudier le partitionnement des PF dans chacune des phases selon leurs solubilités dans ces dernières.

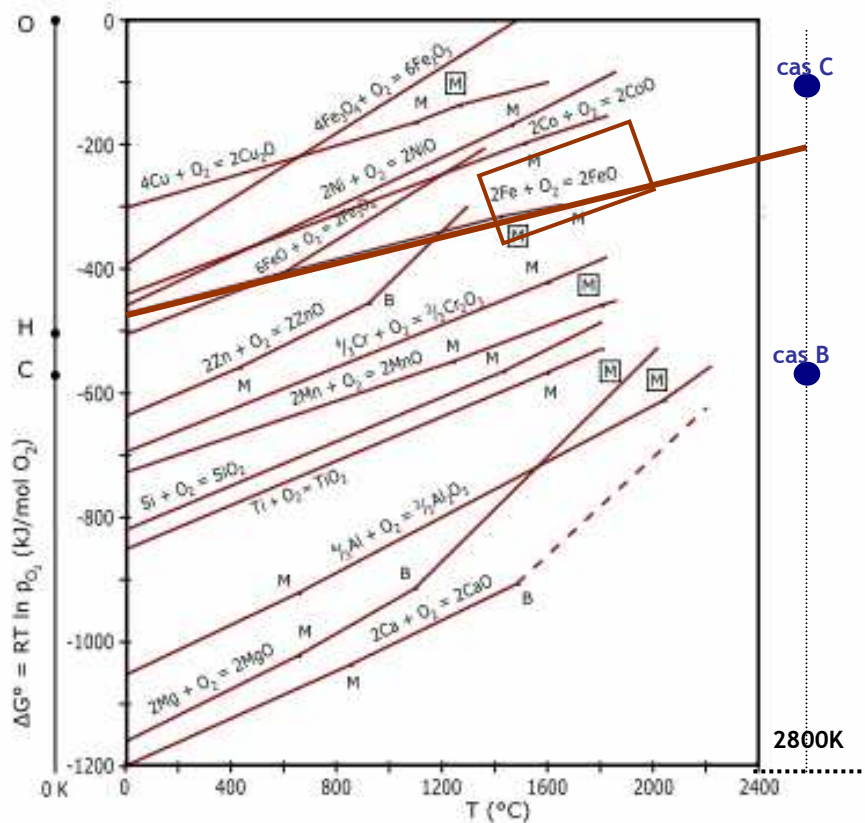


Figure 14: potentiel d'oxydation du fer et comparaison avec les potentiels d'oxygène limites des corium considéré (B et C)

## 4.4 RELACHEMENT DES PF LORS DE L'ICB

A partir des deux corium B et C modélisés précédemment, on relance un calcul MFPR en introduisant un flux de gaz oxydants représentatif de celui attendu lors de l'interaction corium-béton. La figure 15 issue de calculs d'interaction corium béton (code MEDICIS) donne un aperçu des cinétiques de dégagement (au dessus du corium) de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ . Notons qu'à l'interface corium béton, seuls  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2\text{O}$  sont produits et utilisés dans le calcul MEDICIS pour l'oxydation du corium. Le passage d'un dégagement de  $\text{CO}$  à  $\text{CO}_2$  et de  $\text{H}_2$  à  $\text{H}_2\text{O}$  sur la figure 15 traduit donc, pour le calcul MEDICIS, la fin de l'oxydation du corium.

N'ayant pas la possibilité d'introduire  $\text{CO}_2$  dans MFPR, on se contente de raisonner sur la cinétique du nombre de moles d'oxygène libérées par l'ICB et introduites dans le corium, et représentons ce flux, dans le calcul, par un flux de vapeur d'eau pure. Cette approximation est conservative en regard de la cinétique d'oxydation du corium, l'oxydation par  $\text{H}_2\text{O}$  étant plus facile et plus rapide que par  $\text{CO}_2$  (délocalisation des électrons des doublets non liants des atomes d'oxygène au travers de la liaison  $\pi$  carbone oxygène dans  $\text{CO}_2$ , induisant une adsorption plus difficile et moins probable du gaz sur le corium, l'adsorption étant l'étape préalable à l'oxydation). Par ailleurs, le modèle d'oxydation de MEDICIS ne tient aucunement compte de cinétique ou d'énergie de réactions différentes suivant que l'oxydation se fasse par  $\text{CO}_2$  ou  $\text{H}_2\text{O}$  ; la cinétique d'oxydation représentée en figure 15 n'est représentative que d'un débit de gaz, tout atome d'oxygène libéré par l'ICB étant utilisé pour l'oxydation du corium, jusqu'à ce qu'elle soit totale.

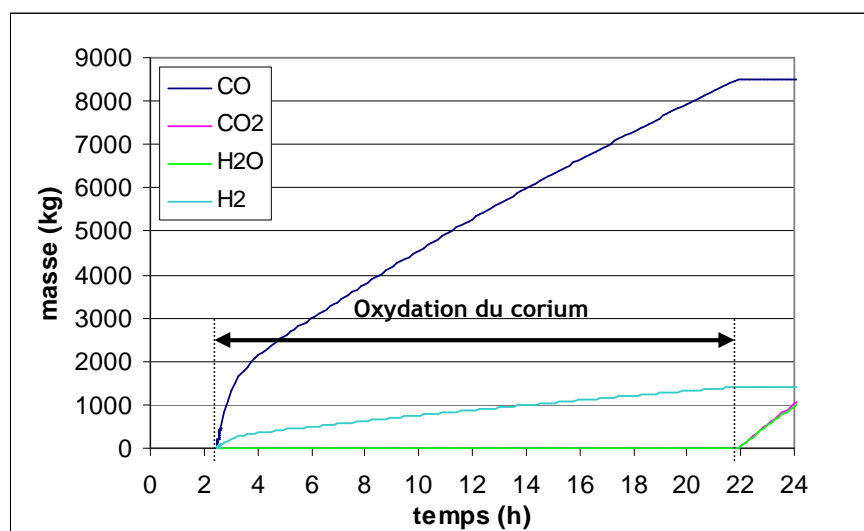


Figure 15 : calcul MEDECIS des gaz issus de la décomposition de béton en phase d'ICB (radier de Cruas) [NT DSR/SAGR 04-42]. Mise en évidence de la phase d'oxydation du corium

Le flux du nombre de moles d'oxygène libérées par l'ICB, à l'interface corium-béton, est donc obtenu à partir des cinétiques de relâchement de CO (le CO<sub>2</sub> donne un atome d'oxygène au corium) et de H<sub>2</sub> (H<sub>2</sub>O donne également un atome d'oxygène) au dessus du corium, soit en regard de la figure 15 : 12000 moles/h pour le CO<sub>2</sub> et 34000 mole/h pour H<sub>2</sub>O.

On considère ainsi un flux dans MFPR de 46000 moles/h de vapeur d'eau. Le temps d'interaction est pris égal à 24h pour une comptabilité avec les études du terme source. L'évolution de la **température est fixée comme linéaire, passant de 2800K au début de l'ICB à 2200K à 24h** (la température finale est prise légèrement supérieure à celle calculée dans [TENAUD 2004]).

Les résultats du calcul sont donnés en figures 16 (corium de composition 0.58UO<sub>2</sub>-0.42ZrO<sub>2</sub>) et 17 (corium de composition 0.58UO<sub>2</sub>-0.42Zr).

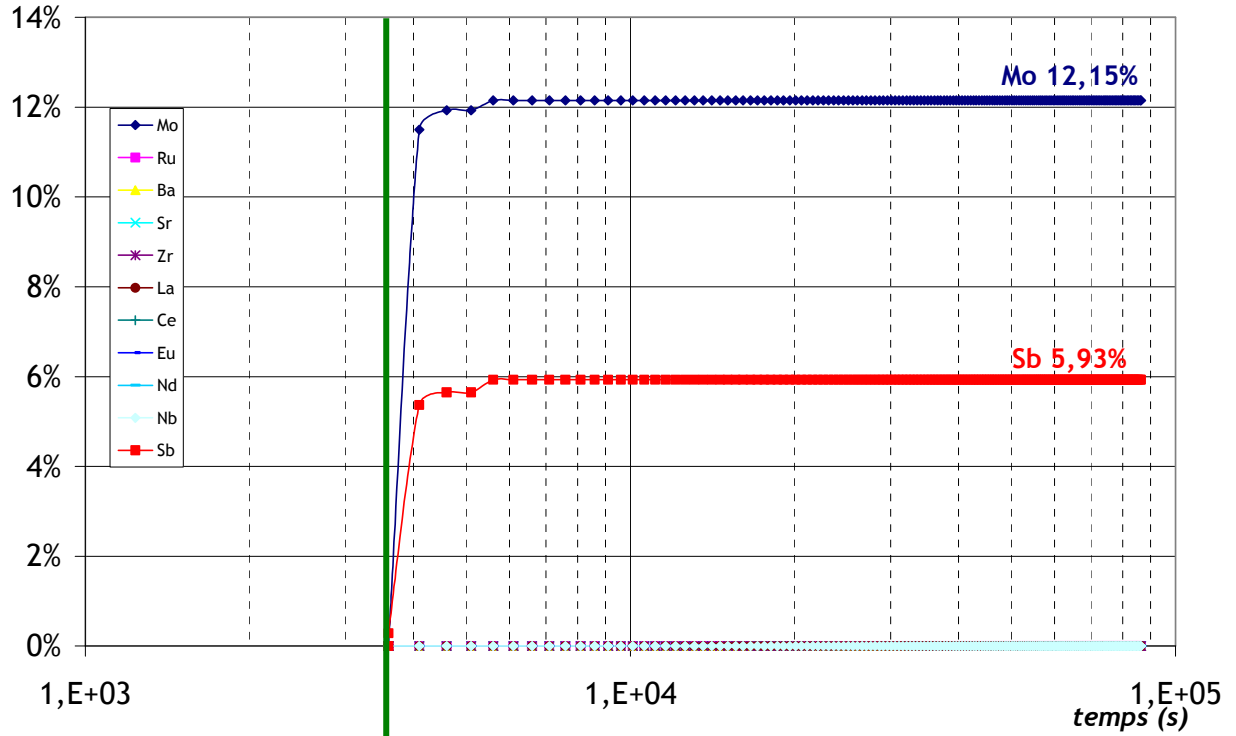
On observe des relâchements de PF radicalement différents entre les figures 16 et 17. Dans le cas d'un corium de type 0.58UO<sub>2</sub>-0.42ZrO<sub>2</sub>, seuls les relâchements de Mo et de Sb sont observés et provoqués par la **vaporisation des espèces gazeuses MoO<sub>3</sub>, Mo<sub>2</sub>O<sub>6</sub>, Mo<sub>3</sub>O<sub>9</sub> et SbO** (spéciation chimique détaillée obtenue par le calcul MFPR). Le potentiel d'oxygène atteint au cours de l'ICB a donc été suffisant pour former ces espèces volatiles. Remarquons également que, dans ce cas, un seuil de relâchement est rapidement atteint, quelle que soit l'augmentation ultérieure du potentiel d'oxygène du combustible (évolution similaire à celle de la stœchiométrie). La phase de relâchement dure donc approximativement une heure après le début de l'ICB

Pour le corium de type 0.58UO<sub>2</sub>-0.42Zr, les relâchements de Mo, Sb mais aussi Ba et Sr sont observés. Le relâchement de Mo est particulièrement retardé par rapport au cas 0.58UO<sub>2</sub>-0.42ZrO<sub>2</sub> (l'évolution de la stœchiométrie permet notamment de voir la nécessité d'une valeur plancher  $x=0.05$  pour la formation des espèces oxydées volatiles). Le relâchement de Sb est également retardé. Pour ce qui est de Ba et Sr, le calcul MFPR montre le relâchement se fait via les **espèces gazeuses Ba et Sr pour  $x<0$ , et BaO et SrO pour  $x>0$** . A potentiel d'oxygène (ou stœchiométrie) équivalent, ces relâchements en Ba et Sr ne sont pourtant pas observés (significativement) pour le corium de type 0.58UO<sub>2</sub>-0.42ZrO<sub>2</sub> (figure 16) pour lequel les quantités initiales de Ba-BaO et Sr-SrO en solution solide sont plus faibles, voire en dessous de la limite de solubilité (figure 11 cas C). Ba et Sr sont en effet, dans ce type de corium, majoritairement localisés dans les phases stables BaZrO<sub>3</sub> et SrZrO<sub>3</sub> (figure 11). L'existence de ces phases dans le corium liquide est tout à fait discutable et la représentation thermodynamique de MFPR pour le problème de relâchement des PF depuis le corium atteint ici ses limites.

Les résultats obtenus semblent toutefois tout à fait cohérents avec ceux de l'expérience (ACE L8). Le molybdène semble bien être le PF le plus sensible au relâchement depuis le corium en ICB. Suivent le baryum, le strontium et aussi l'antimoine, qui n'avait pas été observé dans l'expérience (non introduit initialement dans le corium). La spéciation chimique des espèces relâchement (formes gazeuses) est également conforme à celle trouvée par l'expérience.

Relâchement en ICB  
(en % de l'inventaire corium)

Cas C :  $0.58\text{UO}_2-0.42\text{ZrO}_2$



Déviati $\ddot{u}$ n stœchiométrique x  
( $\text{UO}_{2+x}$ )

ICB

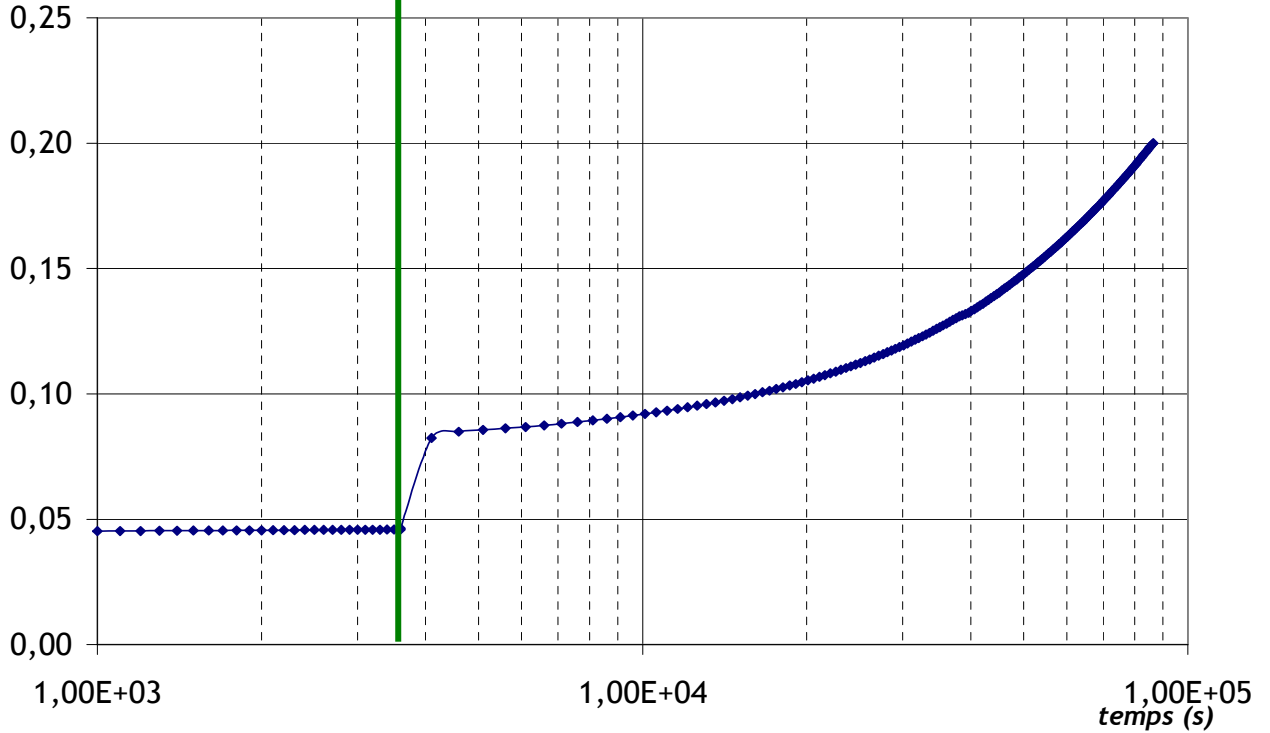
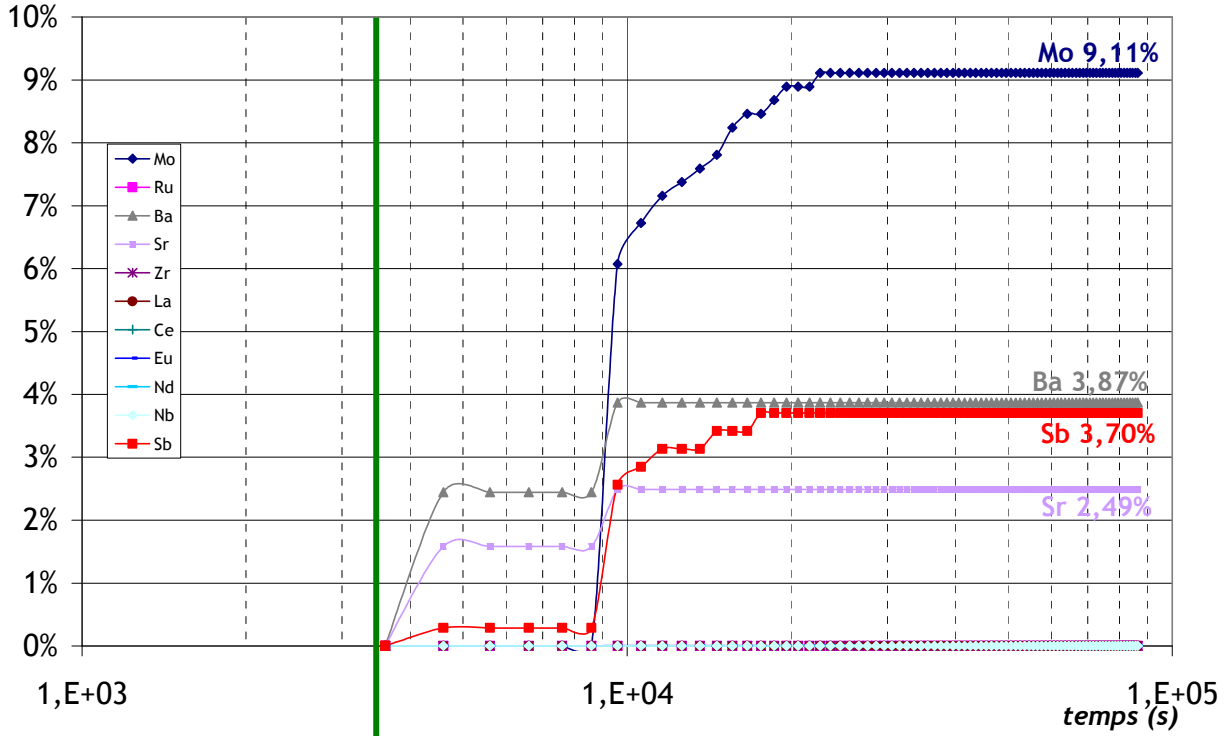


Figure 16 : relâchement depuis le corium (de type C) en cours d'ICB et évolution de la stœchiométrie du combustible

**Cas B : 0.58UO<sub>2</sub>-0.42Zr**

Relâchement en ICB  
(en % de l'inventaire corium)



Déviati on stœchiométrique x  
(UO<sub>2+x</sub>)

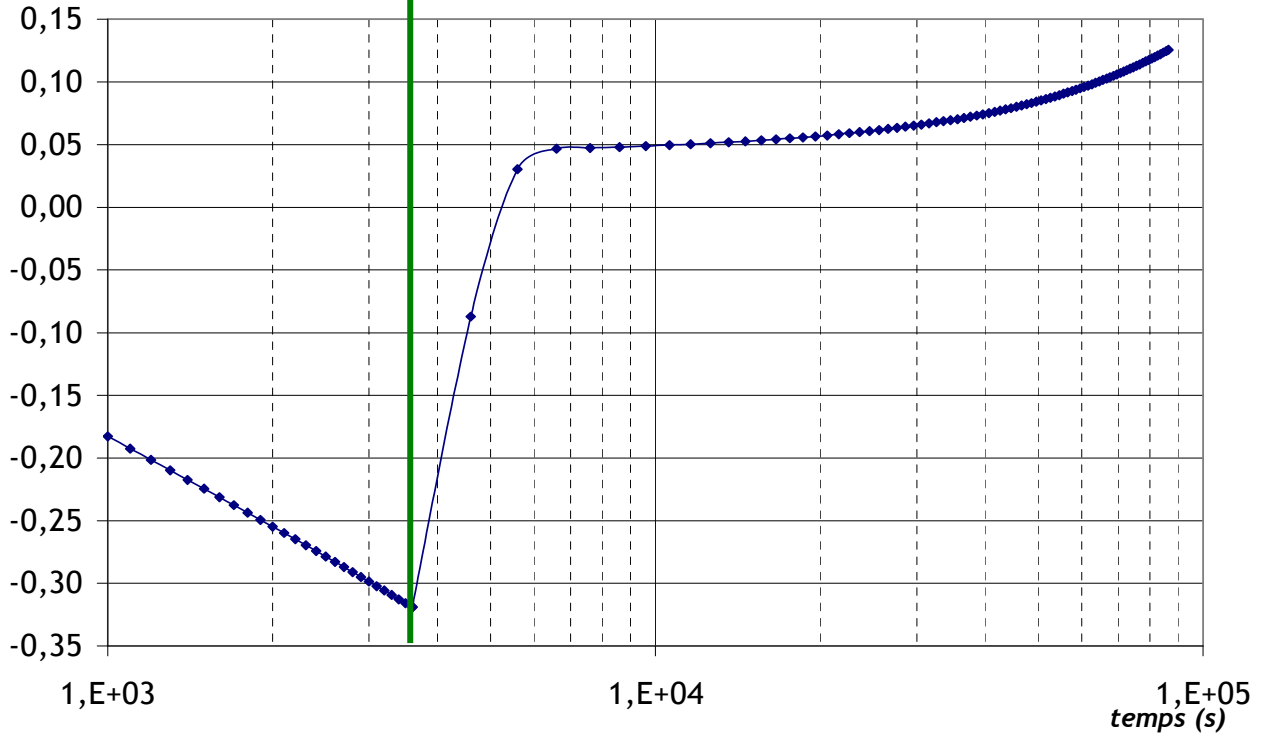


Figure 17: relâchement depuis le corium (de type B) en cours d'ICB et évolution de la stœchiométrie du combustible

## 5 SYNTHÈSE

Bien que l'emploi du code MFPR pour traiter du problème du relâchement des PF depuis le corium en ICB soit peu orthodoxe (ce code n'a pas été validé sur le combustible liquéfié), les résultats obtenus sont cohérents avec l'expérience. Les PF sensibles au relâchement en ICB sont Mo, Ba, Sb et Sr. Les autres PF, en particulier les terres rares pour lesquelles il y avait lieu de s'interroger, ne sont pas relâchés de façon significative.

On constate un impact important du taux d'oxydation du Zr, initialement introduit dans le combustible lors de la formation du corium. Les résultats donnés par MFPR pour deux types de corium, suivant que le Zr soit totalement non-oxydé ou totalement oxydé en  $ZrO_2$  sont les suivants :

<b>CORIUM=0.58 <math>UO_2</math>+0.42 Zr</b>	<b>Mo</b>	<b>Ba</b>	<b>Sb</b>	<b>Sr</b>	<b>Durée de relâchement</b>
Relâchement en ICB (depuis l'inventaire corium)	9.1%	3.9%	3.7%	2.5%	4h30
Relâchement en ICB (depuis l'inventaire initial combustible à l'AAR)	4.2%	1.9%	1.3%	2.2%	

<b>CORIUM=0.58 <math>UO_2</math>+0.42 <math>ZrO_2</math></b>	<b>Mo</b>	<b>Ba</b>	<b>Sb</b>	<b>Sr</b>	<b>Durée de relâchement</b>
Relâchement en ICB (depuis l'inventaire corium)	12.2%	~0%	5.9%	~0%	1h00
Relâchement en ICB (depuis l'inventaire initial combustible à l'AAR)	5.6%	~0%	2.1%	~0%	

La présente étude devra être complétée et comparée à des calculs GEMINI2 couplé aux bases thermodynamiques MEPHISTA (PF) et NUCLEA (matériaux de structure dont le fer notamment). Bien qu'on ne s'attende pas à une modification majeure des résultats présentés ci-dessus, l'emploi du code GEMINI2 pourra permettre d'effectuer une analyse de sensibilité à la quantité de Zr et autres matériaux de structure introduits dans le corium.

## REMERCIEMENTS

L'auteur tient à remercier tout particulièrement M. Roland Dubourg, (IRSN/DPAM/SEMIC/LETR), responsable du code MFPR, pour les conseils avisés et la très rigoureuse relecture de ce document, ainsi que M. Marc Barrachin (IRSN/DPAM/SEMIC/LETR), responsable du développement des bases de données thermochimiques du corium, pour l'échange d'idées et les marques de considération portées à la présente étude.



## **REFERENCES**

### **ARROYAVE 2002**

Thermodynamic modeling of the Zr-O system

R. Arroyave, L. Kaufman, T.W. Eagar

*Calphad, Volume 26, Issue 1, March 2002, Pages 95-118*

### **BAICHI 2003**

Calculs de relâchement des produits de fission émis lors de l'interaction corium-béton avec le code de calculs GEMINI2

M. Baichi

*NT DPEA/SEAC 2003-28*

### **BAICHI 2004**

Masse, activité et puissance résiduelle des produits de fission relâchés en cas de fusion du cœur pour les gestions Garance Hybride MOX et Garance UO<sub>2</sub> 3.7%

M. Baichi

*NT DSR/SAGR 2004-33*

### **BARRACHIN 2008**

New modelling of the U-O-Zr phase diagram in the hyper-stoichiometric region and consequences for the fuel rod liquefaction in oxidising conditions

M. Barrachin, P.Y. Chevalier, B. Cheynet, E. Fischer

*Journal of Nuclear Materials, Volume 375, Issue 3, 30 April 2008, Pages 397-409*

### **CHEVALIER 2004**

Progress in the thermodynamic modelling of the O-U-Zr ternary system

P-Y. Chevalier, E. Fischer, B. Cheynet

*Calphad, Volume 28, Issue 1, March 2004, Pages 15-40*

### **DUBOURG 2005**

Fission product release in the first two PHEBUS tests FPT0 and FPT1

R. Dubourg, H. Faure-Geors, G. Nicaise, M. Barrachin

*Nuclear Engineering and Design, Volume 235, Issue 20, September 2005, Pages 2183-2208*

## **DUCROS 2001**

**Fission product release under severe accidental conditions: general presentation of the program and synthesis of VERCORS 1-6 results**

G. Ducros, P. P. Malgouyres, M. Kissane, D. Boulaud, M. Durin

*Nuclear Engineering and Design, Volume 208, Issue 2, 1 September 2001, Pages 191-203*

## **KLEYKAMP 1985**

**The chemical state of the fission products in oxide fuels**

H. Kleykamp

*Journal of Nuclear Materials, Volume 131, Issues 2-3, April 1985, Pages 221-246*

## **NICAISE 2005**

**Interprétation du relâchement de Cs, Mo, Ba, I, Ru dans les essais VERCORS, VERCORS HT et VERCORS RT**

G. Nicaise

*NT DPAM/SEMIC 2004-037, janvier 2005*

## **PONTILLON 2005**

**Lessons learnt from VERCORS tests: Study of the active role played by UO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>-FP interactions on irradiated fuel collapse temperature**

Y. Pontillon, P.P. Malgouyres, G. Ducros, G. Nicaise, R. Dubourg, M. Kissane, M. Baichi

*Journal of Nuclear Materials, Volume 344, Issues 1-3, 1 September 2005, Pages 265-273*

## **TENAUD 2004**

**Evaluation du risqué de pressurisation de l'enceinte Durant la phase d'Interaction Corium-Béton. Cas d'un corium noyé dès le début de l'ICB**

A.Tenaud

*NT DSR/SAGR 2004-42, décembre 2004*

## **THOMSON 1992**

**Thermal-Hydraulic Aspects of the Large-Scale Integral MCCI Tests in the ACE Program**

D.H Thompson, J.K Fink, D.R Armstrong, B.W Spencer, B.R Sehgal

*Proceedings of the Second OECD (NEA) CSNI Specialist Meeting on Molten Core Debris-Concrete Interaction, Karlsruhe, KfK (NEA/CSNI/R (92) 10), April 1992.*

## **VESSHCHUNOV 1996**

**Critical evaluation of uranium oxide dissolution by molten Zircaloy in different crucible tests**

M. S. Veshchunov, P. Hofmann, A. V. Berdyshev

*Journal of Nuclear Materials, Volume 231, Issues 1-2, July 1996, Pages 1-19*

## **VESHCHUNOV 2006**

**Development of the mechanistic code MFPR for modelling fission-product release from irradiated UO<sub>2</sub> fuel**

M.S. Veshchunov, V.D. Ozrin, V.E. Shestak, V.I. Tarasov, R. Dubourg, G. Nicaise

*Nuclear Engineering and Design, Volume 236, Issue 2, January 2006, Pages 179-200*

## LISTE DES FIGURES

Figure 1 : quantités de gaz relâchés lors de l'essai ACE L8 [Thomson 1992].....	9
Figure 2: présentation schématique du solveur thermochimique de MFPR .....	11
Figure 3 : calcul MFPR de la distribution massique des éléments à l'issue de la période d'irradiation .....	12
Figure 4 : calcul MFPR de la distribution molaire d'équilibre en fin d'irradiation pour Mo, Ba, Sr.....	13
Figure 5: diagramme d'Ellingham relatif au système [UO <sub>2</sub> -PF-O].....	15
Figure 6: calcul MFPR du relâchement des PF en transitoire de température.....	16
Figure 7 : calcul MFPR de la distribution chimique des PF maintenus dans le combustible à l'issue de la séquence de dégradation/fusion (situation finale à 2800K).....	17
Figure 8: interactions UO <sub>2</sub> /Zr/ZrO <sub>2</sub> pour un crayon combustible en situation accidentelle .....	19
Figure 9: diagrammes de phases UO <sub>2</sub> -ZrO <sub>2</sub> et UO <sub>2</sub> -Zr [Chevalier 2004] .....	20
Figure 10: diagramme de phases Zr-O [Arroyave 2002] .....	20
Figure 11 : distribution d'équilibre des PF dans le combustible en fin de relâchement (A), après incorporation de Zr (B) et de ZrO <sub>2</sub> (C). x représente la sur/sous-stœchiométrie moyenne relative à UO <sub>2+x</sub> (code couleur identique à la figure 7).....	22
Figure 12 : potentiels d'oxygène des corium investigués (cas A : combustible, cas B : combustible +Zr, cas C : combustible +ZrO <sub>2</sub> ) .....	23
Figure 13 : relâchement des PF lors de la formation du corium .....	24
Figure 14: potentiel d'oxydation du fer et comparaison avec les potentiels d'oxygène limites des corium considéré (B et C) .....	26
Figure 15 : calcul MEDECIS des gaz issus de la décomposition de béton en phase d'ICB (radier de Cruas) [NT DSR/SAGR 04-42]. Mise en évidence de la phase d'oxydation du corium.....	27
Figure 16 : relâchement depuis le corium (de type C) en cours d'ICB et évolution de la stœchiométrie du combustible.....	29
Figure 17: relâchement depuis le corium (de type B) en cours d'ICB et évolution de la stœchiométrie du combustible.....	30

# ANNEXE: JEUX DE DONNEES MFPR

## 1. Irradiation et phase accidentelle

Task identification name: **Irradiation+release**

=====

Input data for Fission Product Release Problem:

-----

RESTART = 0  
TIME1 = -3.000000000D+07  
TIME2 = 0.000000000D+00

Input data for model options:

-----

Bubb.Size Model NB = 2  
Nucleation IUSER(1) = 0  
Re-resolution IUSER(2) = 3  
At.Diffus IUSER(3) = 1  
Oxidation IUSER(4) = 2  
Bub.Diffus IUSER(5) = 2  
Dislocation IUSER(6) = 0  
Chemistry IUSER(7) = 1  
Database IUSER(8) = 0  
Grain Growth IGRGR = 0  
Reserve flag ISPARE = 0  
Bub.Relax IRELAX = 1  
Liq.Phase ILIQ = 0  
Gas Transport JGTRN = 1  
Srf.Oxidation JMOD = 2  
Clad.Trapping ICLAD = 0

Input data for physical parameters:

-----

DGRAIN = 1.500000000D-05  
VFUEL = 8.000000000D+00  
TGRAD = 0.000000000D+00  
RHODIN = 0.000000000D+00  
H0 = 1.000000000D-02  
TMELT = 3.000000000D+03

Input data for Fuel Oxidatio/Vaporization:

-----

WGHT = 8.200000000D+04  
RADIUS = 2.653846154D-02  
THICK = 2.939130435D-01  
HDIAM = 1.000000000D-03  
SFDFR = 0.000000000D+00  
SATRO = 1.000000000D+00  
SHWD = 4.000000000D+00

Input data for parameters of numerical scheme:

-----

NZ = 4  
Q3 = 1.200000000D+00

Time dependent variables

-----  
Time - time step (s) - writing time step (s)  
- temperature (K) - fission rate (1/m3/s)  
Number of time points = 5

TIME	TSTP	TSTP WRT	TEMP	FSRATE
-3.0000000E+07	1.0000E+06	1.0000E+06	7.0000E+02	3.0000E+19
-1.0000000E+04	1.0000E+00	1.0000E+00	7.0000E+02	3.0000E+19
-9.9990000E+03	1.0000E+02	1.0000E+02	1.0000E+03	0.0000E+00
-5.0000000E+03	1.0000E+02	1.0000E+02	2.8000E+03	0.0000E+00
0.0000000E+00	1.0000E+02	1.0000E+02	2.8000E+03	0.0000E+00

Time - total press (Pa) - mole fractions - flow rate (m3/s)  
Number of time points = 6

TIME	PTOT	PH2O	PH2	PO2	FWRT
-3.2000000E+07	2.5000E+06	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00
-1.0000000E+04	2.5000E+06	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00
-9.9990000E+03	1.0000E+05	1.0000E-03	9.9900E-01	0.0000E+00	1.0000E+01
-5.0000000E+03	1.0000E+05	1.0000E-03	9.9900E-01	0.0000E+00	1.0000E+01
-4.9990000E+03	1.0000E+05	1.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	1.0000E+01
0.0000000E+00	1.0000E+05	1.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	1.0000E+01

\*\*\* ADDITIONAL THERMOCHEMICAL DATA \*\*\*

SPECIES NAME: Src  
SOLUBILITY = 1.000E+02  
SPECIES NAME: SrOc  
SPECIES NAME: Bac  
SOLUBILITY = 1.000E+02  
SPECIES NAME: BaOc

\*\*\* END OF ADDITIONAL DATA \*\*\*

## 2. Formation du corium UO<sub>2</sub>-Zr et relâchement en ICB

Task identification name: **UO2-ZR corium formation and MCCI**

=====

Input data for Fission Product Release Problem:

-----  
                  **RESTART = 1**  
          **TIME1 = 0.000000000D+00**  
          **TIME2 = 8.640000000D+04**

Input data for model options:

-----  
Bubb.Size Model  NB = 2  
Nucleation  IUSER(1) = 0  
Re-resolution  IUSER(2) = 3  
At.Diffus  IUSER(3) = 1  
Oxidation  IUSER(4) = 2  
Bub.Diffus  IUSER(5) = 2  
Dislocation  IUSER(6) = 0  
Chemistry  IUSER(7) = 1  
Database  IUSER(8) = 0  
Grain Growth  IGRGR = 0  
Reserve flag  ISPARE = 0  
Bub.Relax  IRELAX = 1  
Liq.Phase  ILIQ = 0  
Gas Transport  JGTRN = 1  
Srf.Oxidation  JMOD = 2  
Clad.Trapping  ICLAD = 0

Input data for physical parameters:

-----  
DGRAIN = 1.500000000D-05  
VFUEL = 8.000000000D+00  
TGRAD = 0.000000000D+00  
RHODIN = 0.000000000D+00  
H0 = 1.000000000D-02  
TMELT = 3.000000000D+03

Input data for Fuel Oxidatio/Vaporization:

-----  
WGHT = 8.200000000D+04  
RADIUS = 2.653846154D-02  
THICK = 2.939130435D-01  
HDIAM = 1.000000000D-02  
SFDFR = 0.000000000D+00  
SATRO = 1.000000000D+00  
SHWD = 4.000000000D+00

Input data for parameters of numerical scheme:

-----  
                  NZ = 4  
          Q3 = 1.200000000D+00

Time dependent variables

-----  
Time - time step (s) - writing time step (s)  
  - temperature (K) - fission rate (1/m<sup>3</sup>/s)  
  Number of time points = 4

TIME	TSTP	TSTP WRT	TEMP	FSRATE
0.0000000E+00	1.0000E+02	1.0000E+02	2.8000E+03	3.0000E+19
3.6000000E+03	1.0000E+02	1.0000E+02	2.8000E+03	3.0000E+19
3.6010000E+03	5.0000E+02	5.0000E+02	2.8000E+03	0.0000E+00
8.6400000E+04	5.0000E+02	5.0000E+02	2.2000E+03	0.0000E+00

Time - total press (Pa) - mole fractions - flow rate (m3/s)

Number of time points = 4

TIME	PTOT	PH2O	PH2	PO2	FWRT
0.0000000E+00	1.0000E+05	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00
3.6000000E+03	1.0000E+05	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00
3.6010000E+03	1.0000E+05	1.0000	0.0000E+00	0.0000E00	3.0000E+00
8.6400000E+04	1.0000E+05	1.0000	0.0000E+00	0.0000E00	3.0000E+00

\*\*\* ADDITIONAL THERMOCHEMICAL DATA \*\*\*

SPECIES NAME: Src  
SOLUBILITY = 1.000E+02  
SPECIES NAME: SrOc  
SPECIES NAME: Bac  
SOLUBILITY = 1.000E+02  
SPECIES NAME: BaOc  
SPECIES NAME: Csc  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Mos  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Rus  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Bac  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Src  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Lac  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Cec  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Euc  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Ndc  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Nbc  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Sbs  
FRACBU = 0.000E+00  
**SPECIES NAME: Zrc**  
**FRACBU = 1.500E+05**

\*\*\* END OF ADDITIONAL DATA \*\*\*



### 3. Formation du corium $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$ et relâchement en ICB

Task identification name:  $\text{UO}_2\text{-ZrO}_2$  corium formation and MCCI

=====

Input data for Fission Product Release Problem:

-----

RESTART = 1  
TIME1 = 0.000000000D+00  
TIME2 = 8.640000000D+04

Input data for model options:

-----

Bubb.Size Model NB = 2  
Nucleation IUSER(1) = 0  
Re-resolution IUSER(2) = 3  
At.Diffus IUSER(3) = 1  
Oxidation IUSER(4) = 2  
Bub.Diffus IUSER(5) = 2  
Dislocation IUSER(6) = 0  
Chemistry IUSER(7) = 1  
Database IUSER(8) = 0  
Grain Growth IGRGR = 0  
Reserve flag ISPARE = 0  
Bub.Relax IRELAX = 1  
Liq.Phase ILIQ = 0  
Gas Transport JGTRN = 1  
Srf.Oxidation JMOD = 2  
Clad.Trapping ICLAD = 0

Input data for physical parameters:

-----

DGRAIN = 1.500000000D-05  
VFUEL = 8.000000000D+00  
TGRAD = 0.000000000D+00  
RHODIN = 0.000000000D+00  
H0 = 1.000000000D-02  
TMELT = 3.000000000D+03

Input data for Fuel Oxidatio/Vaporization:

-----

WGHT = 8.200000000D+04  
RADIUS = 2.653846154D-02  
THICK = 2.939130435D-01  
HDIAM = 1.000000000D-02  
SFDFR = 0.000000000D+00  
SATRO = 1.000000000D+00  
SHWD = 4.000000000D+00

Input data for parameters of numerical cheme:

-----

NZ = 4  
Q3 = 1.200000000D+00

Time dependent variables

-----

Time - time step (s) - writing time step (s)  
- temperature (K) - fission rate (1/m<sup>3</sup>/s)  
Number of time points = 4

TIME	TSTP	TSTP WRT	TEMP	FSRATE
0.0000000E+00	1.0000E+02	1.0000E+02	2.8000E+03	3.0000E+19
3.6000000E+03	1.0000E+02	1.0000E+02	2.8000E+03	3.0000E+19

3.6010000E+03 5.0000E+02 5.0000E+02 2.8000E+03 0.0000E+00  
8.6400000E+04 5.0000E+02 5.0000E+02 2.2000E+03 0.0000E+00

Time - total press (Pa) - mole fractions - flow rate (m3/s)

Number of time points = 4

TIME	PTOT	PH2O	PH2	PO2	FWRT
0.0000000E+00	1.0000E+05	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00
3.6000000E+03	1.0000E+05	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00	0.0000E+00
3.6010000E+03	1.0000E+05	1.0000	0.0000E+00	0.0000E00	3.0000E+00
8.6400000E+04	1.0000E+05	1.0000	0.0000E+00	0.0000E00	3.0000E+00

\*\*\* ADDITIONAL THERMOCHEMICAL DATA \*\*\*

SPECIES NAME: Src  
SOLUBILITY = 1.000E+02  
SPECIES NAME: SrOc  
SPECIES NAME: Bac  
SOLUBILITY = 1.000E+02  
SPECIES NAME: BaOc  
SPECIES NAME: Csc  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Mos  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Rus  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Bac  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Src  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Lac  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Cec  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Euc  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Ndc  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Nbc  
FRACBU = 0.000E+00  
SPECIES NAME: Sbs  
FRACBU = 0.000E+00  
**SPECIES NAME: Zrc**  
**FRACBU = 1.500E+05**  
**SPECIES NAME: Oc**  
**FRACBU = 3.000E+05**

\*\*\* END OF ADDITIONAL DATA \*\*\*