

## DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **05 novembre 2025**

Nom de famille et prénom de l'auteur. e : **Monsieur Antonin DE AZEVEDO**

Titre de la thèse : Influence du dopage au chrome du combustible nucléaire UO<sub>2</sub> sur la spéciation des produits de fission en condition accidentelle.

### Résumé



Dans le cadre du développement des combustibles « E-ATF » (Enhanced Accident Tolerant Fuel), le combustible UO<sub>2</sub> dopé au chrome, fait partie des solutions retenues du fait de son comportement amélioré en rampe de puissance, grâce à une taille de grains supérieure au combustible UO<sub>2</sub>. Néanmoins, le chrome ajouté est susceptible de réagir avec certains produits de fission et former des espèces possiblement volatiles qui ne pourraient pas exister dans un combustible UO<sub>2</sub> non dopé. Ainsi, la spéciation des produits de fission en situation accidentelle du combustible UO<sub>2</sub> dopé Cr doit être évaluée. Pour cela des études ont été réalisées sur des combustibles simulés (SIMFUEL) UO<sub>2</sub> dopé Cr. Dans un premier temps, l'étude de la synthèse du combustible UO<sub>2</sub> dopé au chrome a permis de mettre en évidence l'influence des paramètres de fabrication sur le développement de la microstructure du matériau ainsi que sur la thermochimie du chrome. L'influence de la méthode de préparation des poudres sur la croissance granulaire a notamment été mise en évidence. Il a également été montré que le potentiel d'oxygène de l'atmosphère de frittage a une grande influence sur la croissance granulaire ainsi que sur la spéciation du chrome en phase secondaire et sur sa solubilité dans UO<sub>2</sub>. Des produits de fission ont été introduits par frittage dans des échantillons d'UO<sub>2</sub> dopé Cr, afin d'étudier leur spéciation en conditions accidentelles. Un premier lot de SIMFUEL a été synthétisé par frittage conventionnel à 1700°C, permettant l'introduction de onze espèces non volatiles à cette température

(Mo, Ru, Rh, Pd, Sr, Ba, Y, Zr, La, Ce et Nd). Un deuxième lot de SIMFUEL a été synthétisé par frittage SPS (Spark Plasma Sintering) à plus basse température, afin d'introduire des espèces volatiles telles que le césium et l'iode. De multiples caractérisations au MEB et par XAS ont mis en évidence la présence de composés identiques à ceux identifiés dans des SIMFUEL UO<sub>2</sub> non dopé mais également des composés nouveaux induits par l'ajout de chrome. Des phases chromite type pérovskite incorporant des lanthanides (CeCrO<sub>3</sub> par exemple) et des précipités métalliques formant des alliages avec du Cr comme Mo-Pd-Rh-Cr ont notamment été identifiés. Des traitements thermiques en conditions thermodynamiques représentatives du début d'un accident grave ont mis en évidence un effet du chrome sur l'oxydation des précipités métalliques, ainsi qu'une décomposition en température ( $T < 1700^{\circ}\text{C}$ ) des précipités chromite contenant des lanthanides. Ces modifications dans la spéciation de certains produits de fission induites par l'ajout de chrome suggèrent de possibles changements en termes de volatilité de ces produits de fission en situation accidentelle.

**Mots-clés :** combustible nucléaire, chrome, produits de fission