

Commission des Communautés Européennes  
Centre Commun de Recherche  
Etablissement de Karlsruhe

Simulation thermique de régime transitoire  
sur combustibles irradiés

M. Coquerelle, C. Perrier

Communication présentée à l'occasion de la 21<sup>ème</sup> réunion du  
groupe de travail à Mol, 10-11 juin 1982

21ème Réunion du Groupe de Travail

"Laboratoires Chauds et Télémanipulation"

Simulation Thermique de Régime Transitoire  
sur Combustibles Irradiés

M. Coquerelle, C. Perrier

## Sommaire

### 1. Introduction

### 2. Principe de l'installation

### 3. Fours

#### 3.1. Four à chauffage électrique direct (D.E.H.)

3.1.1. Alimentation

3.1.2. Contrôles

3.1.3. Programmeurs

3.1.4. Enceinte du four

3.1.5. Préparation de l'échantillon

#### 3.2. Four à induction

3.2.1. Alimentation

3.2.2. Enceinte de four. Porte échantillon

3.2.3. Mesure de la température

### 4. Etat des travaux

## 1. Introduction

La compréhension des déformations mécaniques subies par une aiguille combustible à oxyde mixte irradiée dans des conditions de régime transitoire nécessite la caractérisation physico-chimique du combustible expérimenté. Dans le cadre d'un tel travail, les informations acquises s'adressent davantage aux modélistes qui calculent la cinétique des processus régissant les variations de volume du combustible et la migration des produits de fission, qu'aux ingénieurs qui s'intéressent en priorité à l'évolution de l'hydraulique et de la thermique du système. La quantité de matériau à analyser, liée au nombre d'irradiations en régime transitoire sera toujours limitée et la possibilité de simuler sur combustible irradié des régimes de température se rapprochant des conditions in-pile augmenterait de façon sensible le potentiel d'analyses et justifie, de ce fait, des développements expérimentaux dans ce sens.

Ces expériences de simulation ne mettent en jeu que de faibles quantités de matériau - 10 à 25 mm de colonne de combustible - sur lesquelles sera créé un gradient de température se rapprochant de celui obtenu en réacteur dans des conditions réelles; les informations expérimentales découlent de la comparaison de la caractérisation avant et après la simulation. La validité de ce travail suppose d'une part, une connaissance relativement précise du régime de température durant la simulation et, d'autre part, la disponibilité de laboratoires de microscopie optique, microscopie électronique, de spectrométrie de masse et gamma de haute qualité.

X Ce rapport décrit l'installation permettant ces simulations dont l'équipement de base comprend deux fours.

- Le premier four (DEH) permet l'obtention de gradients thermiques semblables à ceux existant dans le combustible lors d'excursion de température dans le réacteur. Dans ce cas, le combustible irradié sert de résistance chauffante et est placé entre deux électrodes en tungstène connectées au générateur; l'installation permet d'atteindre la fusion centrale du combustible.

Au cours du recuit, opéré en atmosphère hélium, la température extérieure du combustible est évaluée en deux positions par pyrométrie; la puissance injectée est aussi mesurée.

Ces recuits thermiques ont nécessité la mise au point de la préparation d'échantillons de combustibles irradiés à partir d'aiguilles soit par extrusion mécanique soit par dissolution chimique ou électrolytique.

Simultanément l'analyse des gaz de fission relâchés durant l'expérience peut se faire par spectrométrie- $\gamma$  ou par spectrométrie de masse.

- Parallèlement à ces expériences sous gradient de température, un four à induction permet le recuit de combustible, à température constante sous atmosphère contrôlée jusqu'à la température de fusion du combustible (500 Khz, 25 KVA sur la bobine).

Durant ces traitements le relâchement des gaz de fission peut également être mesuré par spectrométrie- $\gamma$  ou par spectrométrie de masse.

Ce four pourra aussi être utilisé pour la détermination des gaz retenus dans les combustibles irradiés et nous y avons associé une installation de broyage sous atmosphère contrôlée permettant la mesure du relâchement de gaz de fission en fonction de la granulométrie de broyage.

## 2. Principe de l'installation

L'installation comporte une cellule  $\alpha$ ,  $\gamma$  et une boîte à gants (Fig. 1). La cellule  $\alpha$ ,  $\gamma$  contient les fours à chauffage électrique direct et à induction ainsi que les broyeurs placés sur une console commune en position arrière du caisson  $\alpha$ . Ce positionnement était imposé, d'une part par la nécessité de réduire les pertes en énergie pour l'alimentation de la bobine du four à induction, en limitant au maximum la distance oscillateur-bobine et, d'autre part, par le désir de pouvoir intervenir manuellement, le cas échéant, via la fenêtre arrière dans la mesure où le niveau d'activité gamma l'autorise (Fig.2).

L'ensemble fours-broyeurs est desservi par un circuit fermé d'hélium utilisé pour le conditionnement d'atmosphère, comme gaz de refroidissement ou encore comme gaz vecteur pour produits de fission gazeux.

En aval des fours, sur le circuit He se trouvent

- a) des pièges permettant la rétention de produits de fission solides tels que Cs, Ru, Rb ou I<sub>2</sub> (Fig.1,3).
- b) hors de la cellule  $\alpha$ ,  $\gamma$ , une boîte à gants munie d'un flow counter permettant la mesure en continu du Kr et du Xe ainsi qu'un piège à azote liquide en vue de collecter l'ensemble des produits de fission gazeux relâchés durant les traitements thermiques. L'analyse qualitative et quantitative des produits de fission gazeux peut être effectuée au moyen d'un spectromètre de masse dont le quadropole est installé dans la boîte à gants (Fig.1).

Signalons encore que l'application du règlement de sécurité a entraîné l'insertion d'un filtre en acier fritté sur le circuit He à la sortie du caisson  $\alpha$  de la cellule  $\alpha, \gamma$ .

### 3. Fours

#### 3.1. Four à chauffage électrique direct (D.E.H.)

Des installations similaires dont le principe consiste à utiliser le combustible comme résistance électrique ont déjà été développées en laboratoire froid à l'Institut Européen des Transuraniens par Sari (1), à la KfK par Alexas (2) et en laboratoire chaud aux USA par Wrona (3) et au CEA Par Combette et Krieger (4). Chacun de ces fours est l'application de considérations théoriques développées par Freund et Schikarski (5) qui les premiers ont décrit les possibilités de simulation hors pile des régimes thermiques rencontrés par les combustibles en réacteur. L'appareillage conçu pour nos cellules chaudes découle de l'installation de Sari. Les changements que nous y avons apportés sont dictés par les problèmes associés à l'état mécanique de l'échantillon irradié, à son positionnement dans le four avec le manipulateur et aussi à la récupération des produits de fission gazeux; aucune modification n'a été apportée au générateur (Fig.4).

##### 3.1.1. Alimentation

Le générateur doit tenir compte du niveau de température maximum à atteindre et aussi des propriétés de résistance spécifique des combustibles à analyser. Celles-ci diffèrent totalement suivant qu'il s'agisse d'oxyde ou de carbure. Pour couvrir la gamme des besoins, nous disposons de 4 régions de puissance commutables à la main.

Dans le cas de l'oxyde, la résistance spécifique diminue exponentiellement avec la température, le coefficient de température  $\alpha = 1/\rho \frac{d\rho}{dT}$  étant négatif, le traitement thermique s'effectue en plusieurs étapes.

L'échantillon subit un préchauffage obtenu par une tension d'amorçage d'environ 300-400 V, qui chute rapidement à 50 V avec un courant d'environ 2,5 A. Au cours de cette étape la résistance spécifique de  $UO_2$  chute de  $10^9$  à  $10^{-1} \Omega \cdot cm^{-1}$ . Ce stade étant atteint, on passe à un deuxième régime de puissance avec une tension d'entrée de 40-50 V et un courant de 4-5 A, ce qui permet d'obtenir des températures de 1200°C sur l'échantillon. Si des températures plus élevées sont souhaitées, 2 régimes de puissance restent à la disposition de l'opérateur, l'un caractérisé par une tension de 60 V et un courant de 250 A, l'autre par une tension de 15 V et un courant de 2000 A (Fig. 5).

### 3.1.2. Contrôles

En cours d'opération, la tension entre les électrodes et le courant passant à travers l'échantillon sont contrôlables et enregistrables en permanence. Les seuls contrôles de température consistent en la mesure de la température en surface de l'échantillon en deux positions diamétralement opposées, par pyrométrie optique (Fig.4).

Les pyromètres utilisés sont une version spéciale du type IS2 de la firme Gulton où l'électronique est séparée de l'optique et est installée hors de la cellule. Les mesures s'effectuent dans le domaine spectral s'étendant de 0.4 - 1.1  $\mu\text{m}$  au moyen d'un détecteur en silicium. Les domaines de température mesurables s'étendent de 750 à 1500°C ou de 1100 à 3000°C. La surface mesurée sur l'échantillon est d'environ 5 mm<sup>2</sup>. En cellule, la partie optique et le pyromètre sont protégés par un blindage en Pb de 80 mm d'épaisseur; l'ensemble est fixé sur une table à 2 mouvements de liberté (selon l'axe et le rayon de l'échantillon) télécommandables.

### 3.1.3. Programmeurs

2 programmeurs, l'un optique (firme Hartmann und Braun) et l'autre digital (firme IEA) permettent la programmation de la puissance en fonction du temps.

### 3.1.4. Enceinte du four

L'enceinte du four est constituée par un cylindre en quartz ( $\emptyset = 80$  mm) mobile, supportant l'électrode supérieure et qui, en opération, peut être utilisée sous atmosphère contrôlée ou sous vide (Fig.6). Dans l'axe de l'enceinte, repose le porte-échantillon fixé et centré sur l'embase. En dehors d'un socle, le porte-échantillon comprend l'électrode et la section de combustible analysée entourée d'un tube en quartz assurant le positionnement de l'ensemble. Durant l'essai, une force de 3 kg est exercée sur l'échantillon.

### 3.1.5. Préparation de l'échantillon

La préparation de l'échantillon constitue certainement la partie la plus aléatoire des différentes étapes expérimentales nécessaires pour ce genre d'essai. Elle consiste à préparer une section de colonne de combustible sans matériau de gainage et à la placer dans l'enceinte du four. Nous avons développé trois méthodes pour récupérer une section de combustible irradié.

a) extrusion mécanique

Une section d'aiguille combustible est tronçonnée à une longueur ad hoc. Cette section est fixée dans un guidage aligné sur l'axe du piston d'une presse hydraulique dont l'avance est contrôlable (Fig.7). Lors de l'avance progressive du piston, l'échantillon est extrudé de la gaine et est transféré directement dans le tube en quartz du porte-échantillon. Avant d'en effectuer le transfert dans l'enceinte du four, il convient d'éliminer les modifications de résistance de l'échantillon créées pour la présence de fissurations. On peut pallier partiellement à cet inconvénient, en remplissant de poudre  $UO_2$  les fissures provenant de l'irradiation. La vibration par ultra-son nous est apparue comme une méthode efficace pour effectuer cette opération.

b) dissolution de la gaine

Dans le cas où l'extrusion mécanique du combustible se révèle impossible, deux méthodes de remplacement peuvent être utilisées; elles consistent à dissoudre le matériau de gainage soit chimiquement soit électrolytiquement.

1. Dissolution chimique en milieu méthanol -  $Br_2$  en utilisant un dispositif à circulation continue du solvant en circuit fermé.
2. Dissolution électrolytique en milieu nitrate.

3.2. Four à induction

Cette installation répond à deux besoins:

- a) réaliser des recuits thermiques à température constante et suivre simultanément le relâchement du gaz de fission
- b) déterminer la quantité de gaz de fission retenue dans des combustibles irradiés

3.2.1. Alimentation

Il s'agit d'un générateur 500 Khz, 51 KVA de la firme Hüttinger assurant une puissance maximum de 25 KVA sur la bobine. Dans ce type d'alimentation, l'oscillateur est séparé du générateur et en vue d'éviter des pertes de puissance intolérables, il convient de réduire au maximum la distance oscillateur-bobine (1-1,5 m), ce qui dans notre cas particulier a imposé le positionnement de la bobine en position arrière du caisson  $\alpha$  et celle de l'oscillateur entre la fenêtre arrière du caisson  $\alpha$  et



la protection  $\gamma$  arrière de la cellule  $\alpha$ ,  $\gamma$  (Fig. 8). Ce conditionnement a nécessité le développement d'un passage coaxial étanche  $\alpha$  fixé sur la fenêtre arrière du caisson  $\alpha$ . L'ensemble générateur, oscillateur et bobine est refroidi par un circuit fermé à eau de la firme Wischman, débitant au maximum 13 m<sup>3</sup>/h.

### 3.2.2. Enceinte du four. Porte échantillon

L'ensemble creuset-bobine se trouve dans une enceinte cylindrique  $\emptyset = 280$  mm,  $h = 200$  mm comportant quatre fenêtres en quartz, trois suivant des positions radiales situées à 90° et une en position axiale supérieure (Fig. ). Cette enceinte peut travailler sous vide primaire ou sous atmosphère contrôlée. Le porte-échantillon est constitué d'un creuset en tungstène de  $\emptyset = 15$  mm,  $h = 40$  mm posé et centré sur un bloc d'isolation en nitrure de bore; il est associé à une tige mobile, déplaçable permettant le transfert du creuset hors de l'enceinte au niveau de la fenêtre axiale en position supérieure (Fig.9).

### 3.2.3. Mesure de la température

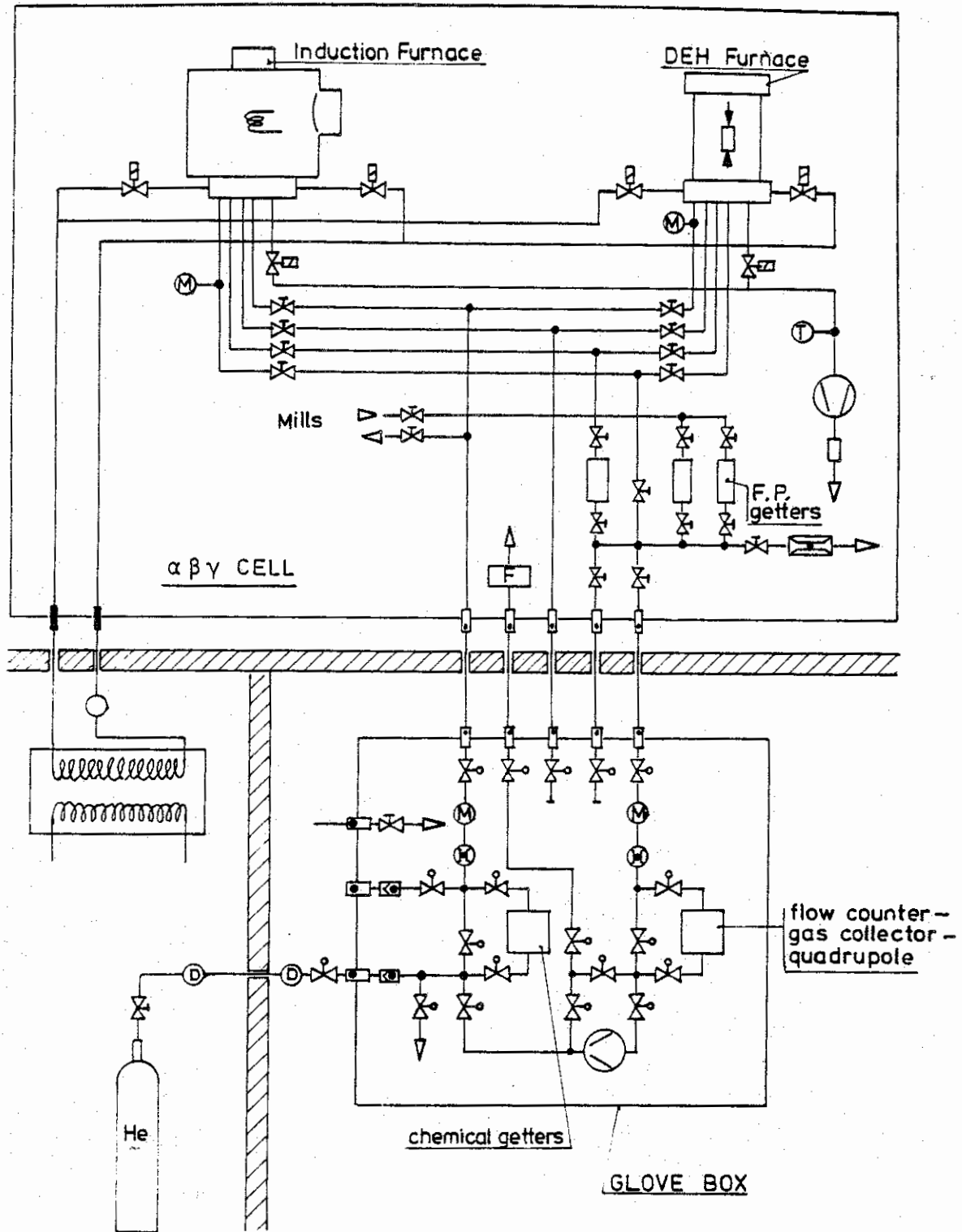
La température de l'échantillon est assurée par un pyromètre à travers la fenêtre axiale supérieure. Il s'agit d'un pyromètre à détecteur PbS de type IP1, de la firme Gulon, à double domaine de température - 600-1500°C et 1000-3000°C dans le domaine spectral compris de 1 à 3  $\mu$ m.

## 4. Etat des travaux

X Le fonctionnement et la performance des fours D.E.H. et à induction ont été testés avec succès; le montage en cellule pourrait, désormais, s'opérer dans le courant de juin 1982.

## Références

- /1/ F. QUICK and C. SARI, Consideration of the Simulation of In-Pile Radial Temperature Profiles in Mixed Oxide Fuel Pins, J. Nucl. Mat. 47 (1973) 219-228
- /2/ A. ALEXAS, über die Simulation des transienten Verhaltens von  $UO_2$ -Stäben mit Hilfe direkt elektrischer Beheizung, KfK 2658 (1981)
- /3/ B.J. WRONA and J.T.A. ROBERTS, First Report on Apparatus to Simulate In-Reactor Transient Heating Conditions in Oxide Fuel Columns, Nuclear Technology, 20(1973)114
- /4/ B. KRIEGER, S. DUCAMP, P. COMBETTE, Irradiation Fuel Behaviour under Accident Condition and Correlation with Fission Gas Release, Proc. of ANS Meeting Reactor Safety Aspects of Fuel Behaviour, Sun Valley Idaho, (1981) 2, 237



## ANNEALING OF IRRADIATED FUELS FLOW SHEET

Fig.1. Implantation de l'installation de traitement thermique sur combustibles irradiés

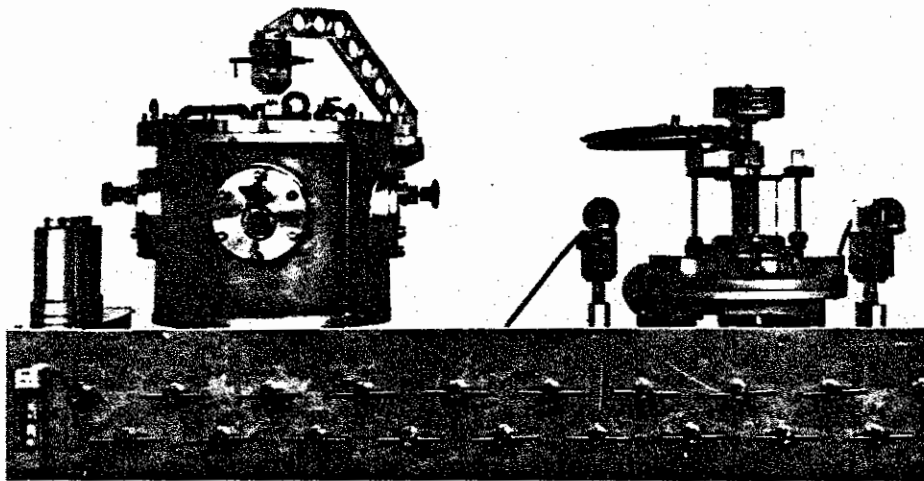
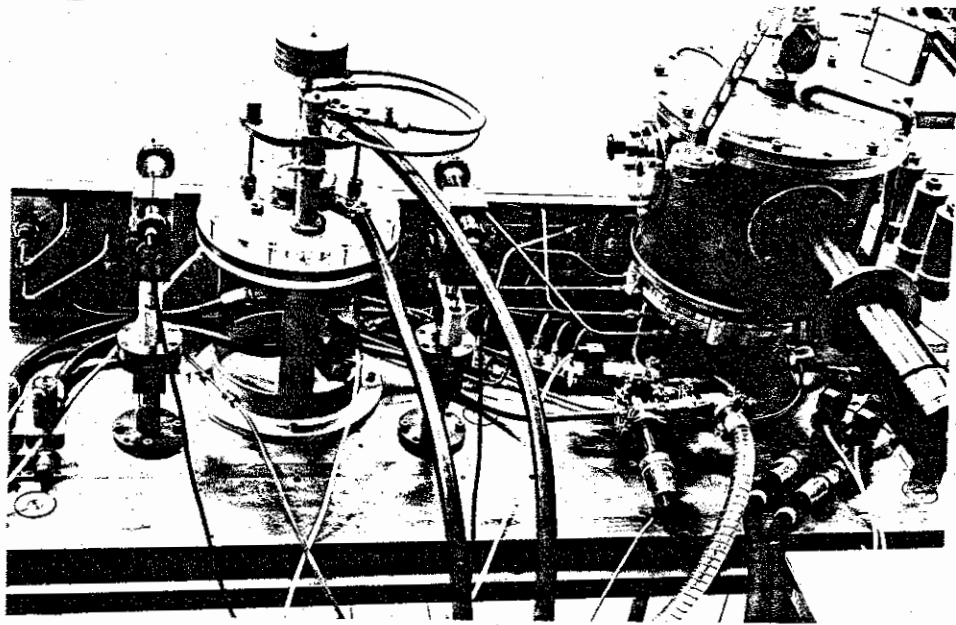
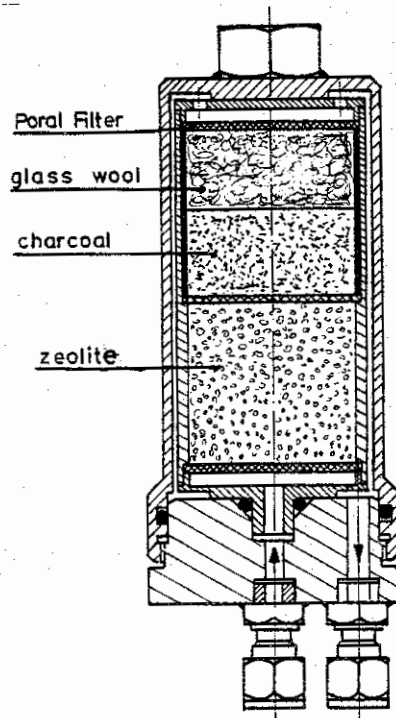


Fig.2. Four à chauffage électrique direct et four à induction montés sur console commune

Haut: vue à partir de la face arrière de la cellule

Bas : vue à partir de la face avant de la cellule



FISSION PRODUCTS  
GETTER.

Fig.3. Coupe transversale des pièges utilisés pour blocage des produits de fission solides

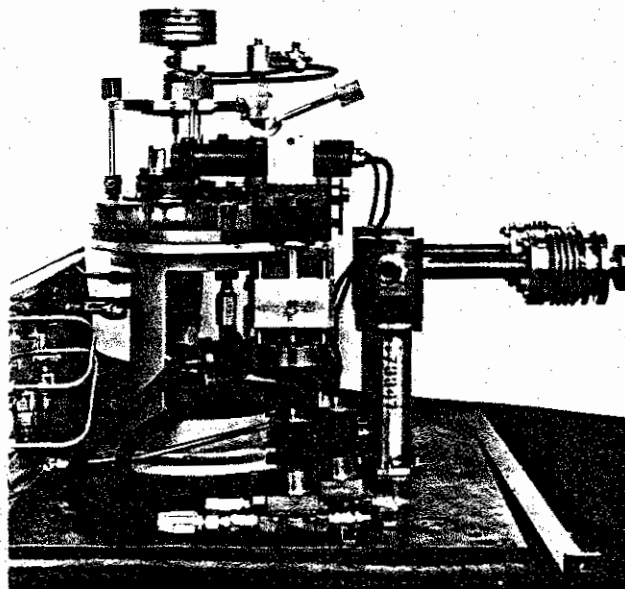
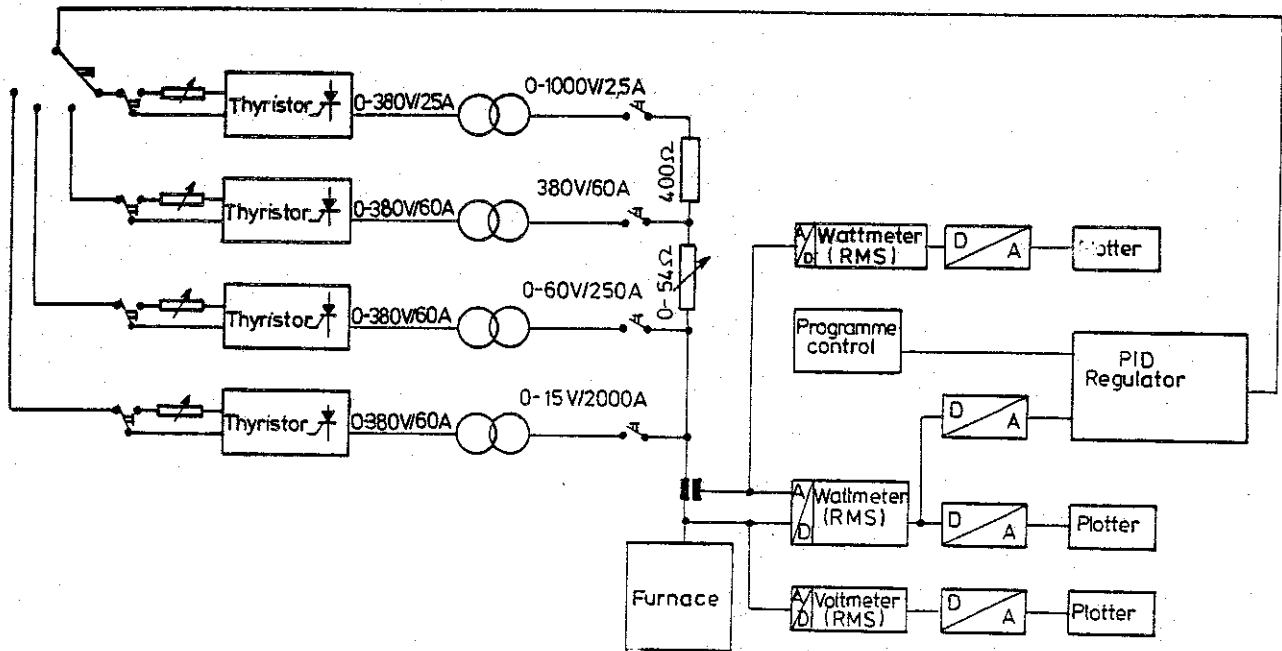


Fig.4. Four électrique à chauffage direct



DIRECT ELECTRICAL HEATING  
POWER SUPPLY

Fig.5. Principe d'alimentation électrique pour le four à chauffage électrique direct

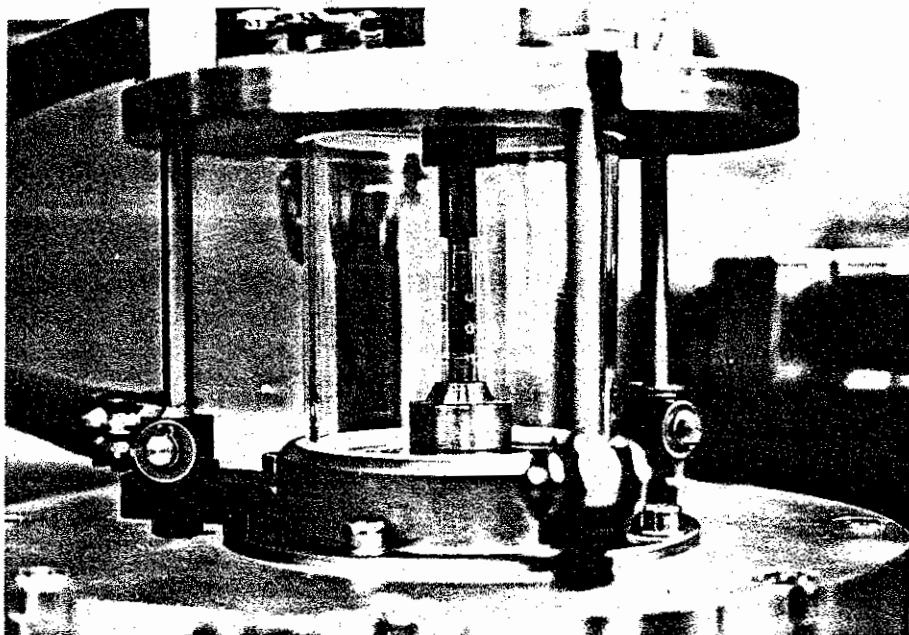
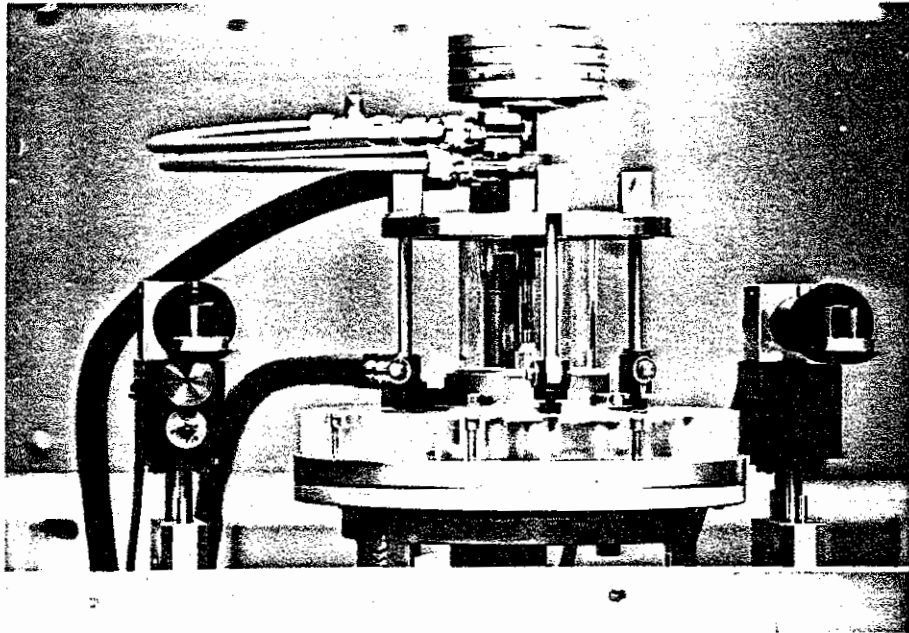
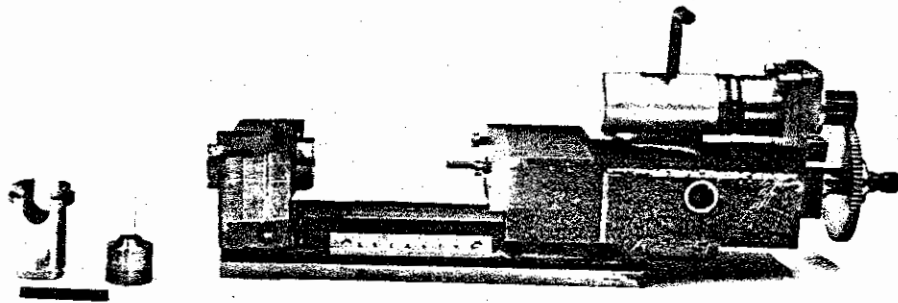
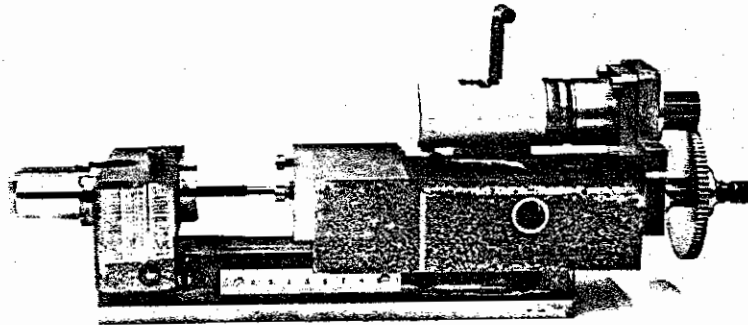


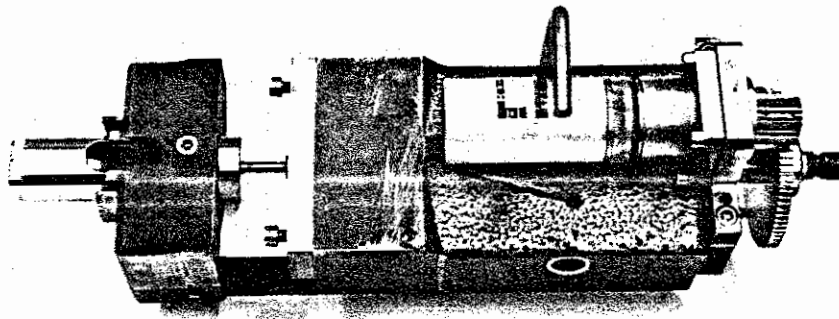
Fig.6. Enceinte du four à chauffage électrique direct  
Haut: enceinte avec pyromètres  
Bas : enceinte et porte-échantillon



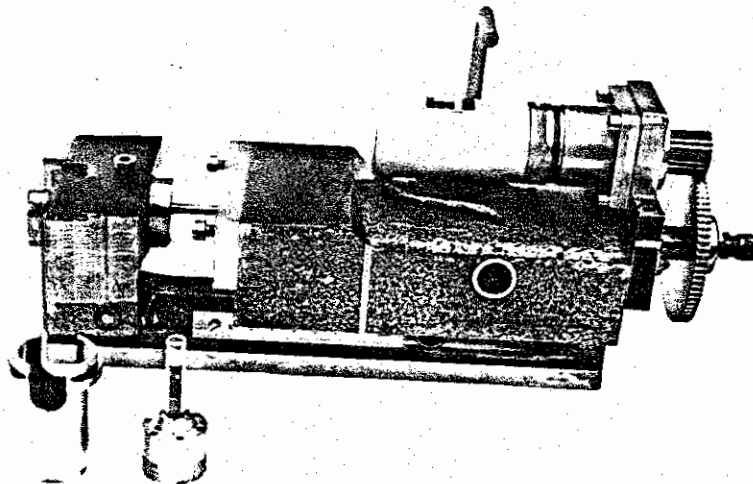
a)



b)



c)

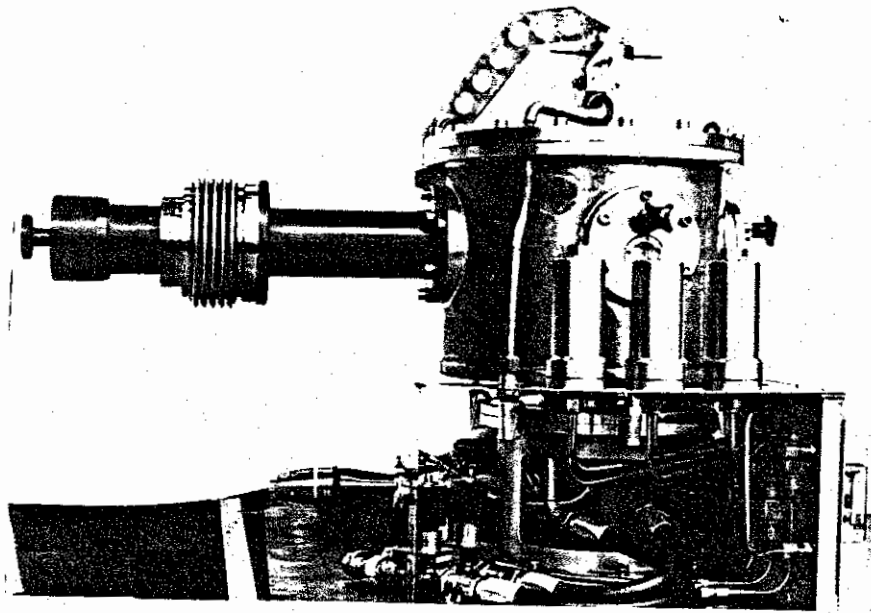


a)

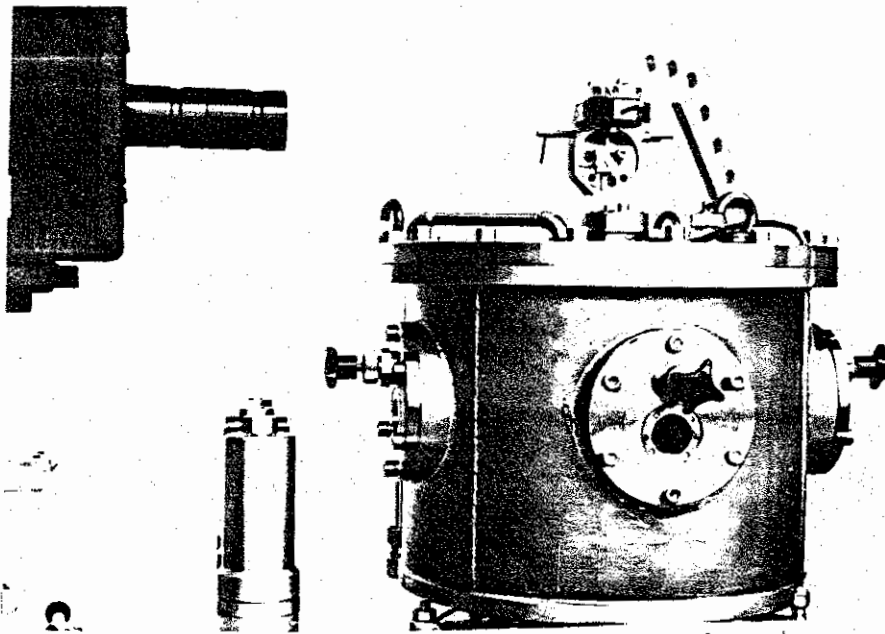
Fig.7. Extrusion mécanique de combustible irradié

- a) presse et porte-échantillons
- b) en début d'opération
- c) en fin d'opération
- d) porte-échantillon dégagé de la presse et chargé du combustible extrudé





a)



b)

Fig.8. Four à induction

a) vue avec passage  $\alpha$  coaxial oscillateur-bobine

b) vue avec pyromètre et filtres pour produits de fission solides

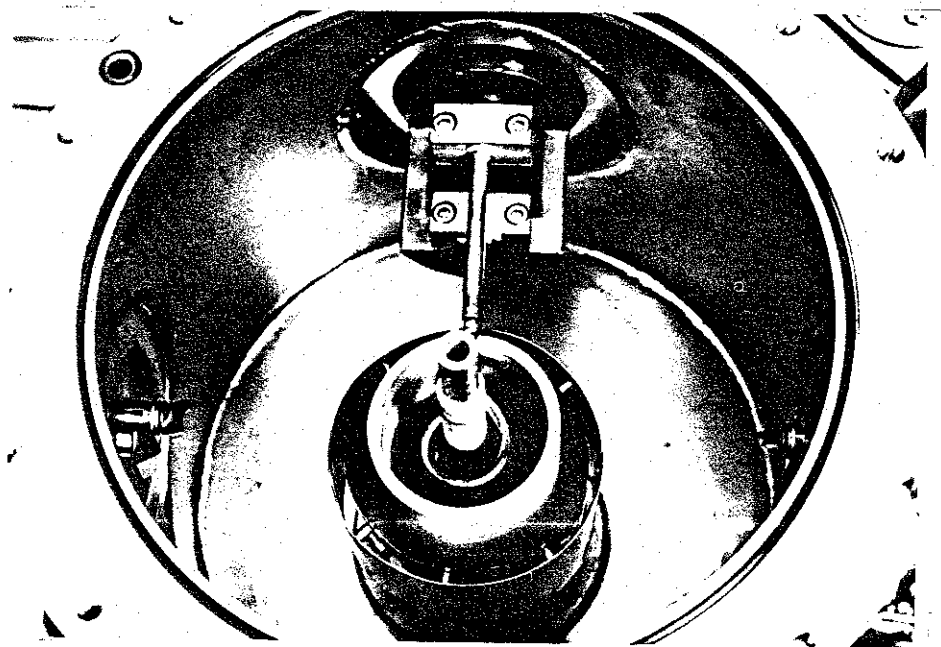


Fig.9. Creuset en position hors de la bobine. Position supérieure du four