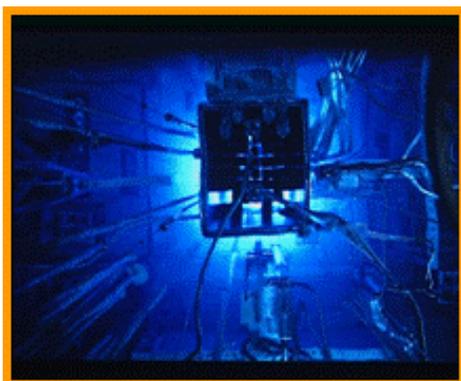


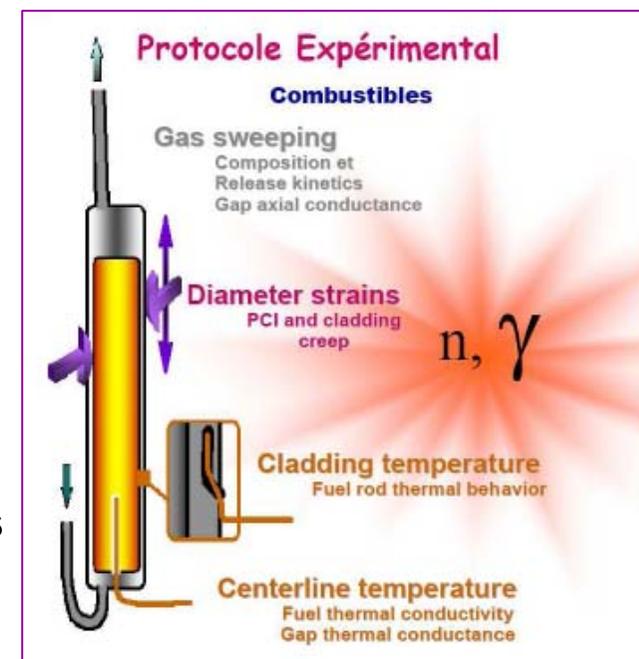
Irradiations des combustibles nucléaires en réacteur de recherche

Compréhension du comportement du combustible nucléaire sous flux grâce à l'instrumentation en ligne



Daniel Parrat
Thierry Lambert
Mayeul Phélip

CEA Cadarache
Direction de l'Energie Nucléaire
Département d'Etudes des Combustibles



↪ Introduction

- ✓ Apport des irradiations
- ✓ Réacteur de recherche et dispositifs d'irradiation
- ✓ Thématiques d'intérêt et exigences sur l'instrumentation

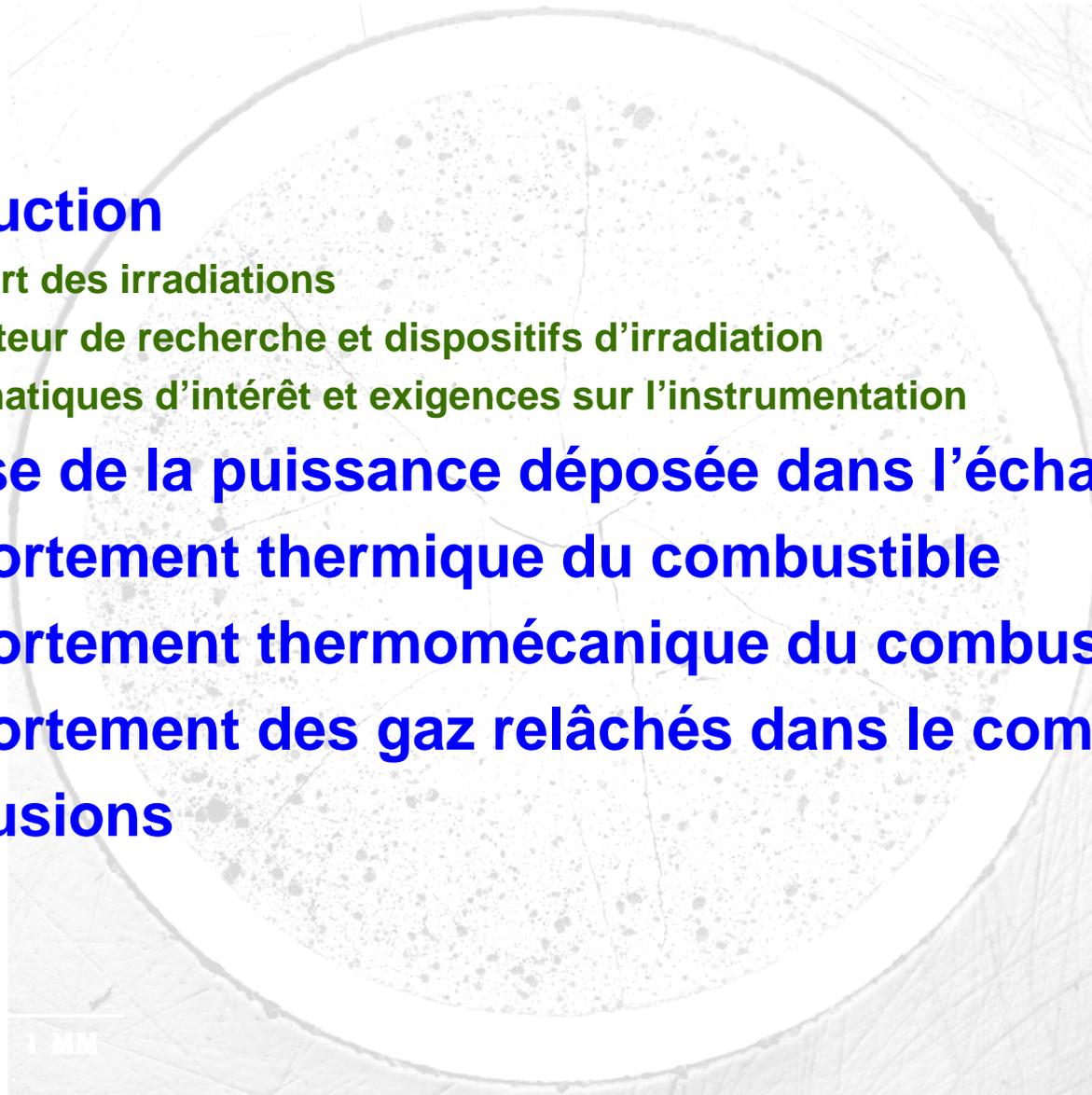
↪ Maîtrise de la puissance déposée dans l'échantillon

↪ Comportement thermique du combustible

↪ Comportement thermomécanique du combustible

↪ Comportement des gaz relâchés dans le combustible

↪ Conclusions



Pourquoi des irradiations expérimentales ?

- Comprendre le comportement du matériau combustible sous irradiation
- ✓ Valider les modèles de comportement de l'élément combustible (crayon, plaque, aiguille...)

- Caractériser et qualifier un produit prototypique ou industriel
- ✓ Optimiser le dimensionnement lors du fonctionnement normal et incidentel
- ✓ Qualifier le concept en toutes situations à l'échelle du crayon puis de l'assemblage complet

Irradiations orientées **CONNAISSANCES**

- ❖ Manque de connaissances ou de données
- ❖ Capitalisation dans les modèles
- ❖ Extension du domaine de validation des modèles



⇒ Asseoir une démarche de conception ou de sûreté et maintenir l'expertise

Etudes en « propre » ou « jointes »

Irradiations orientées **PRODUIT**

- * Nouveau produit
- * Optimisation d'un produit existant
- * Evolution des conditions d'emploi
- * Evolution d'un critère de sûreté
- * Réduction des incertitudes

⇒ Support à un dossier de qualification

Très liées aux objectifs des industriels

① Acquérir des connaissances pour la science des matériaux

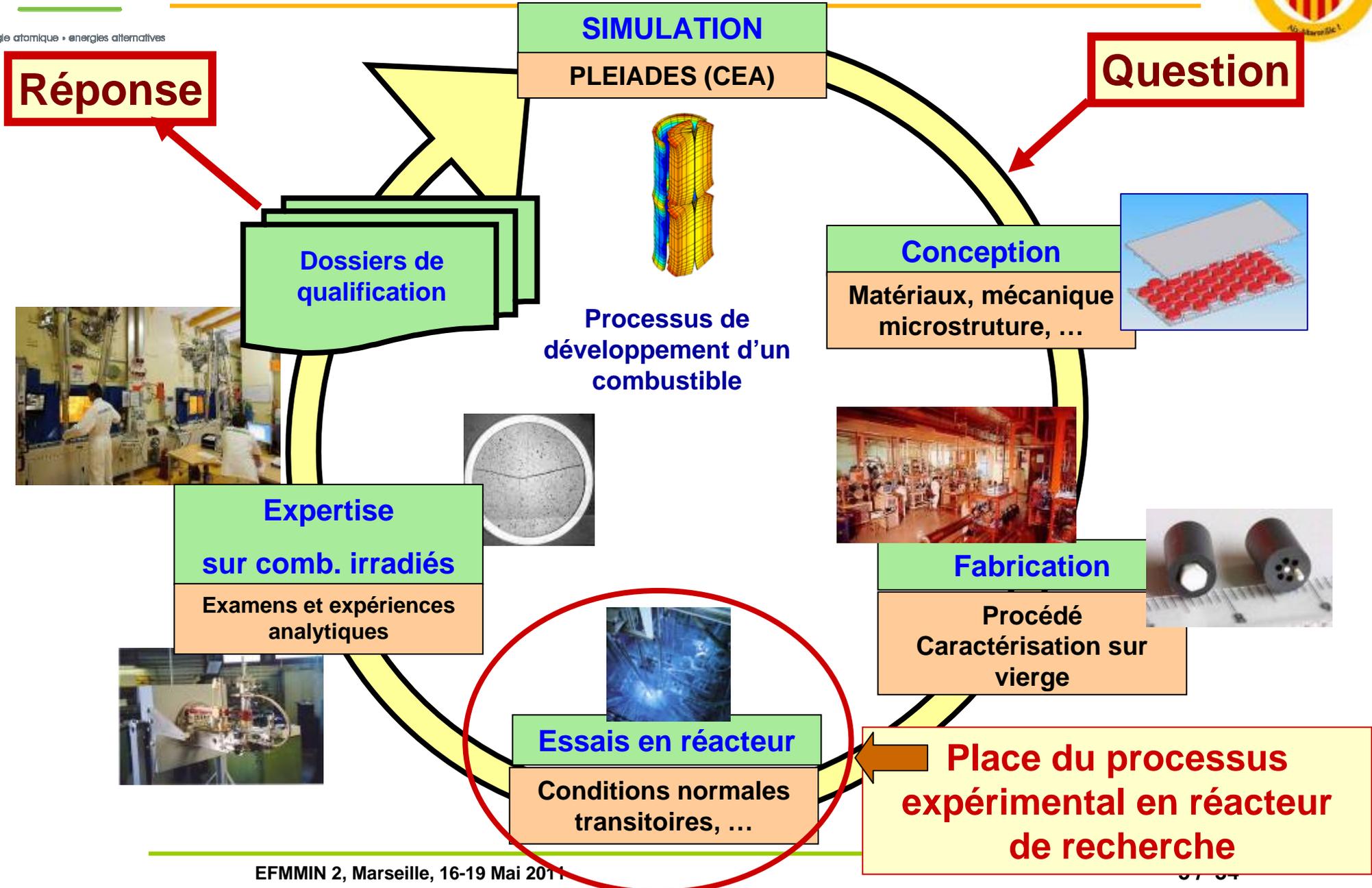
- ✓ Evolution des propriétés de base des matériaux sous flux neutrons et gamma
- ✓ Données pour les modèles de comportement des matériaux sous flux



② Répondre aux demandes des industriels (exploitants, fabricants) pour le fonctionnement normal, incidentel et accidentel des réacteurs

- ↳ Facteurs limitant la durée de vie des principaux composants de la centrale
 - ✓ Fluence limite sur cuve, internes
- ↳ Amélioration de l'utilisation des combustibles sans affecter les marges de sûreté
 - ✓ Augmentation de puissance, souplesse d'exploitation, fiabilité, *taux de combustion*
 - ✓ Optimisation des matériaux constitutifs d'un combustible nucléaire
- ↳ Réponses aux problèmes survenant dans l'exploitation du parc actuel
 - ✓ Fabrication ou exploitation
- ↳ Meilleure connaissance des marges de sûreté
 - ✓ Réduction des incertitudes sur les données d'entrée des codes (licensings,...)
- ↳ Connaître le comportement des combustibles et matériaux en situation incidentelle et accidentelle (en et hors dimensionnement) :
 - ↳ Meilleure prévention d'un accident hypothétique (facteurs déclenchants)
 - ↳ Evaluation des conséquences radiologiques
 - ↳ Mitigation des conséquences

Introduction - apport des irradiations

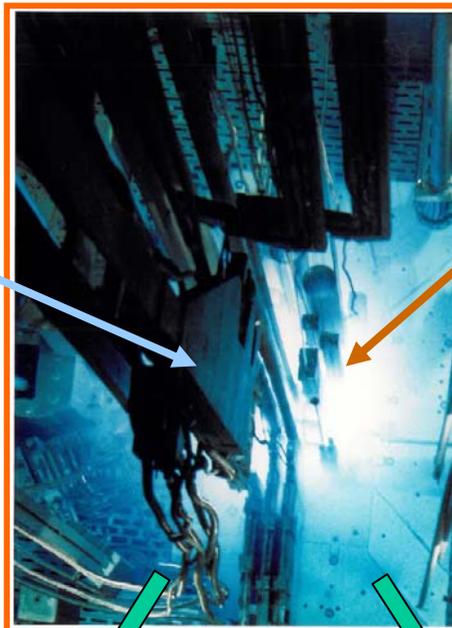


Introduction - réacteur de recherche et dispositif d'irradiation

Dispositif d'irradiation instrumenté

Porteur de la charge expérimentale et de son instrumentation en ligne

Assure les conditions d'environnement requises



Réacteur de recherche

Cœur « nourricier » fournissant les neutrons (flux et spectre)

Moyens logistiques et expérimentaux support

Irradiation

Emplacement (fixe ou variable)

+

Protocole expérimental (« historique d'irradiation »)

Adaptés aux objectifs scientifiques

et

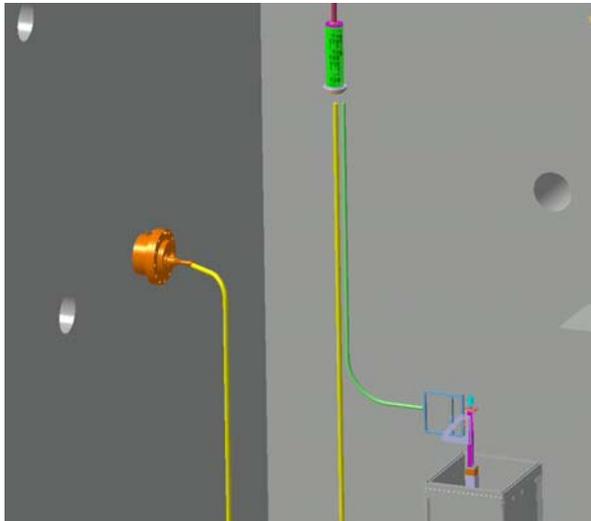
Examens non destructifs

En support au:

- Pilotage de l'expérience**
- Connaissance de l'évolution de l'échantillon**

Introduction - réacteur de recherche et dispositif d'irradiation

Emplacements possibles pour les dispositifs d'irradiation de combustibles



**OSIRIS
core**

↳ Irradiation de combustibles en cœur

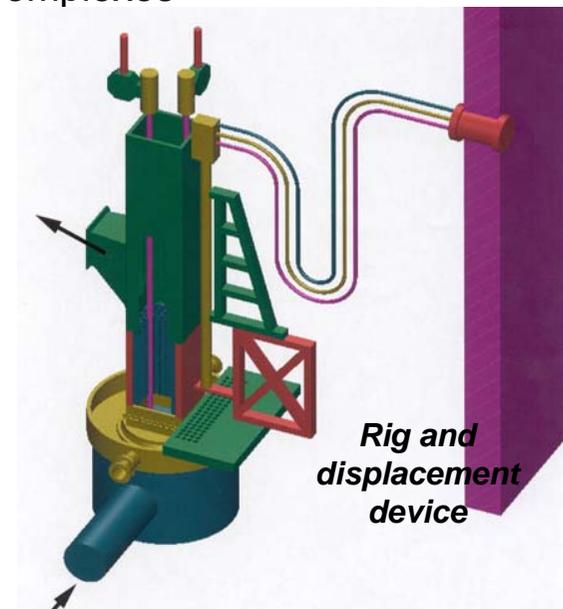
- ✓ Flux homogènes
- ✓ Fort flux neutronique rapide mais (trop) forts flux thermiques
- ✓ Flux gamma souvent élevé (évacuation puissance + part « parasite »)

- Optimal pour l'étude des filières « rapides » : RCG, RNR,...
- Problème d'évacuation de la puissance (=> mini-échantillons,...)
- Impact d'un incident expérimental sur le cœur nourricier : études de sûreté plus complexes

↳ Irradiation de combustibles en réflecteur

- ✓ Fort flux neutronique thermique
- ✓ Large zones accessibles aux dispositifs
- ✓ Fort gradient radial de flux (à manager), mais large plage possible
- ✓ Faible flux rapide (indice de spectre)

- Possibilité d'ajuster la puissance par « déplacement » du dispositif
 - Position de sécurité arrière à flux très faible
 - Limites sur la puissance linéique maximale si dispositif absorbant neutroniquement et combustible peu réactif
 - Attention aux effets des « voisins » sur l'expérience (déplacement)



**Rig and
displacement
device**

↳ **Maitrise de la puissance déposée dans l'échantillon**

- ✓ Flux de neutrons
- ✓ Fluence
- ✓ Flux gamma

↳ **Comportement thermique du combustible**

- ✓ Température caloporteur
- ✓ Température gaine
- ✓ Température combustible à cœur

↳ **Comportement des gaz relâchés dans le combustible**

- ✓ Pression dans le crayon combustible
- ✓ Inventaire des gaz relâchés
- ✓ Cinétique de relâchement des gaz

↳ **Comportement thermomécanique du combustible**

- ✓ Elongation gaine
- ✓ Elongation colonne combustible
- ✓ Déformation diamétrale

↳ **Fiabilité**

- ✓ Réparation en cellule chaude impossible ou difficile et risquée
- ✓ Faible dérive sous flux ou “cuisson” opérée auparavant – tenue sous flux intense
- ✓ Expériences pouvant être longues (2 à 4 ans)

↳ **Justesse et précision au vu des exigences scientifiques (modèles...)**

- ✓ Exemple : mesure de quelques μm de variations dimensionnelles diamétrales

↳ **Miniaturisée** (dimensions typiques de quelques mm)

↳ **Résistante à haute température** ($> 300^\circ\text{C}$ et jusqu'à 1600°C)

↳ **Résistante à la corrosion externe du caloporteur**

- ✓ Eau sous pression ou bouillante, gaz à haute température , métaux liquides...)

↳ **Résistante aux Neutrons / γ**

- ✓ Dose $> 15\text{kGy/s}$ et $> 10\text{dpa/a}$ dans les réacteurs d'irradiation de matériaux)

=> Ne pas oublier la redondance !

- ↪ **Historique de puissance fissile et de puissance gamma**
 - ✓ Donnée d'entrée principale pour la modélisation (prédiction, interprétation)
 - ✓ Influence au premier ordre sur:
 - ☞ La température de l'échantillon
 - ☞ La création des produits de fission (PF)
 - ☞ L'endommagement de l'échantillon (PF de recul, neutrons rapides...)
 - ✓ La puissance fissile est déduite du flux neutronique calculé et/ou mesuré

- ↪ **La (re)constitution d'un historique de puissance nécessite :**
 - ✓ Des phases préalables de calculs neutroniques (prédiction - dimensionnement)
 - ✓ Des phases de mesures in situ des flux à l'emplacement d'irradiation avant et après l'expérience (validation de la prédiction)
 - ✓ Des mesures en ligne des flux neutroniques et gamma (pilotage)
 - ✓ Des mesures post-irradiatoires sur des intégrateurs de dose (historique réel)
 - ✓ Des phases de mesures sur l'échantillon avant et après l'expérience (historique réel pour une correcte interprétation)
 - ☞ En réacteur de recherche
 - ☞ En laboratoire de haute activité (EPI)

↪ Phases préalables de calculs neutroniques

- ✓ Connaissance de la composition isotopique en noyaux lourds (NL) du combustible pour le cas d'une expérience sur du combustible préalablement irradié en réacteur de puissance
- ✓ Connaissance des isotopes (PF) absorbants de neutrons dans l'échantillon
- ✓ Constitution du dispositif (parois...)
- ✓ A partir du flux « non perturbé »



↪ Phases de mesures in situ des flux à l'emplacement d'irradiation avant et après l'expérience

- ✓ Campagne spécifique, mais essentielle !
- ✓ A renouveler régulièrement (évolution des caractéristiques du cœur etc...)

Campagnes de dosimétrie des emplacement d'irradiation – Exemple Osiris

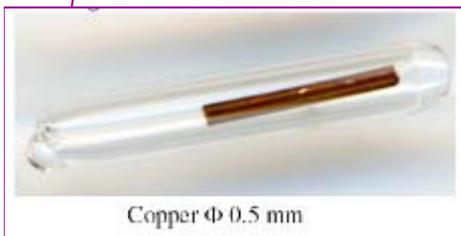


Maîtrise de la puissance déposée dans l'échantillon

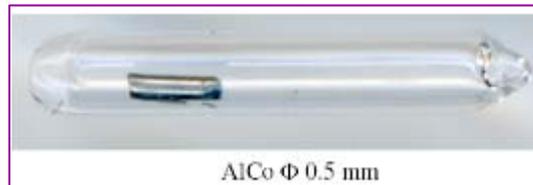
✓ Des mesures en ligne des flux neutroniques et gamma

✓ Des mesures post-irradiatoires sur des intégrateurs de dose (discrimination des flux en énergie)

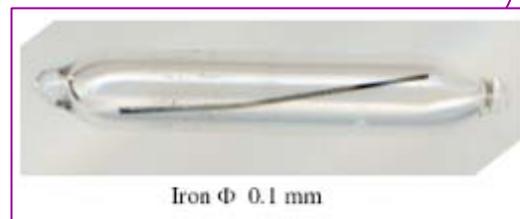
Chambre à fission miniature
Sonde auto génératrice (SPND ou collectron)
Thermométrie gamma



Copper Φ 0.5 mm



AlCo Φ 0.5 mm



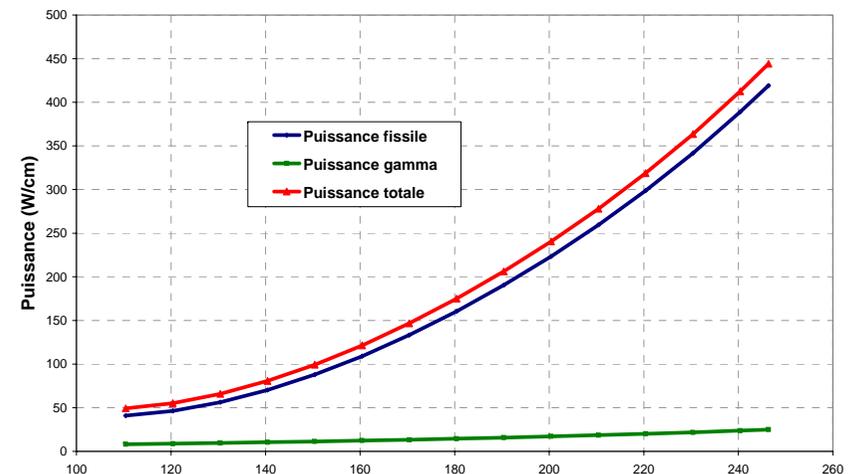
Iron Φ 0.1 mm

Exemples d'intégrateurs

$^{54}\text{Fe} (n,p) \rightarrow ^{54}\text{Mn} E > 1 \text{ MeV}$

$^{59}\text{Co} (n,\gamma) \rightarrow ^{60}\text{Co}$ Flux thermique

Incertitude Puissance fissile pour une irradiation type rampe de puissance $\leq 6,5\%$



Evolution de la puissance
Mesures en ligne Osiris

Maîtrise de la puissance déposée dans l'échantillon

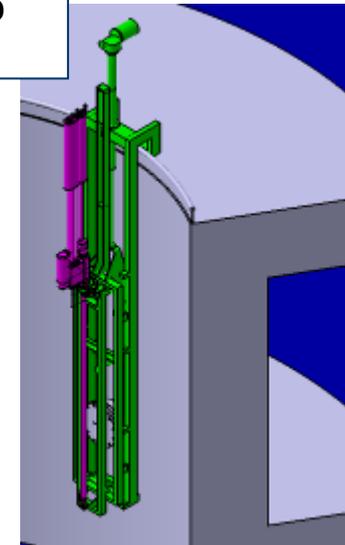
✓ Des phases de mesures sur l'échantillon avant et après l'expérience

➔ En réacteur de recherche

Bancs d'examen en piscine réacteur

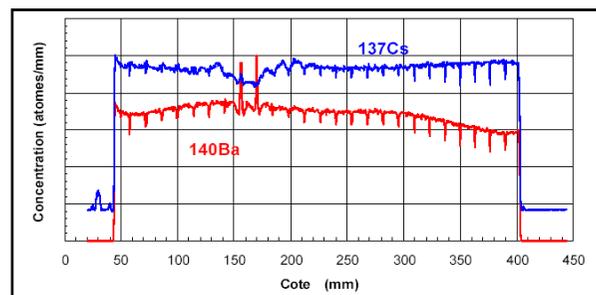
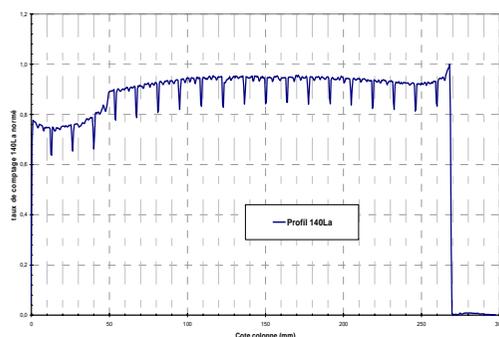
- Spectrométrie gamma
- Tomographie X et gamma (Projet RJH)

Projet de Banc END immergé en RJH



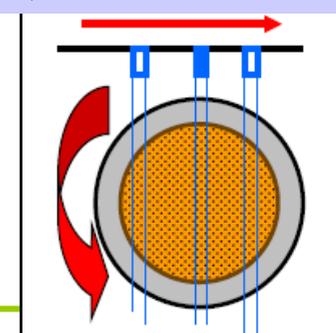
Types de spectrométries gamma sur crayon

1D (« scrutation »)



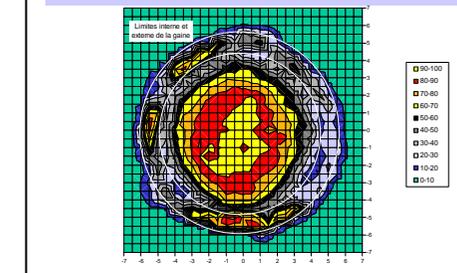
2D

(« transversal »)



3D

(« tomographie »)



Maîtrise de la puissance déposée dans l'échantillon

Thématique	Paramètre	Technologie OSIRIS	Autres capteurs	En développement
Maîtrise de la puissance déposée dans l'échantillon et les structures	Flux de neutrons	En ligne : collectrons Avant irradiation : campagne de dosimétrie (CALMOS)	Chambres à fission miniatures	Chambres à fission sub-miniatures Système de mesure des flux de neutrons rapides (FNDS)
	Fluence	Après irradiation : intégrateurs de doses discriminants en énergie	-	
	Flux gamma	Campagne de dosimétrie par emplacement à l'aide d'un calorimètre mobile en translation (CALMOS)	-	Collectrons gamma

- ↪ La température du combustible influe fortement sur son comportement : évolution microscopique et macroscopique, relâchement des gaz de fission. Sa connaissance et sa bonne prédiction par les codes de calcul est essentielle.
 - ✓ Evolution de la conductivité thermique, en particulier sa dégradation avec le taux de combustion
 - ✓ Conductance et évolution du jeu

- ↪ **Mesure d'environnement (caloporteur)**
 - ✓ Gammas de températures jusqu'à 350°C pour les REP, 550°C pour les RNR, jusqu'à 1000°C pour les concepts GEN IV de type V-HTR
 - ✓ Environnement : sous flux neutronique et gamma – Eau sous pression, sodium, hélium...Débits caloporteur importants

- ↪ **Mesure de la température de la première barrière**
 - ✓ Accès à la température de surface du combustible (connaissance du profil thermique + flux de chaleur)
 - ✓ Gammas de température du même ordre que pour le caloporteur + ΔT radial barrière
 - ✓ Première barrière en alliage de zirconium, en acier inox, en inconel, en graphite...

- ↪ **Mesures à cœur du combustible**
 - ✓ Gammas de températures jusqu'à 2200°C. Précision +/- 1,5%
 - ✓ Environnement : oxyde d'uranium, de plutonium, carbures, nitrures – fort flux neutronique et gamma

Principaux moyens de mesures des températures utilisés ou envisagés

- Thermocouples

- Type K, N, C suivant les gammes de température

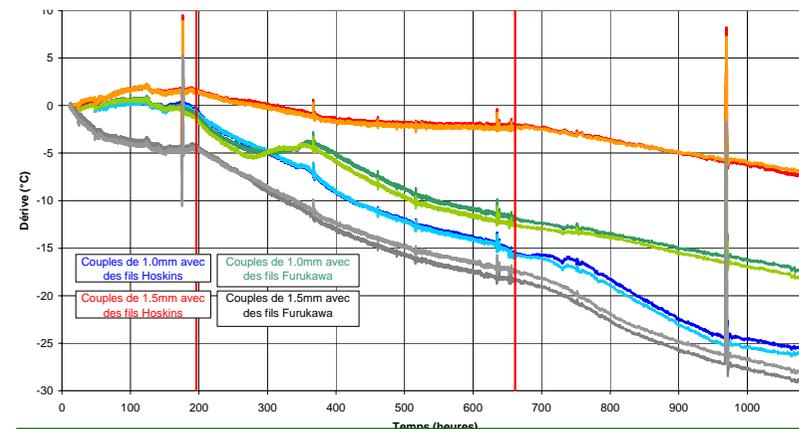
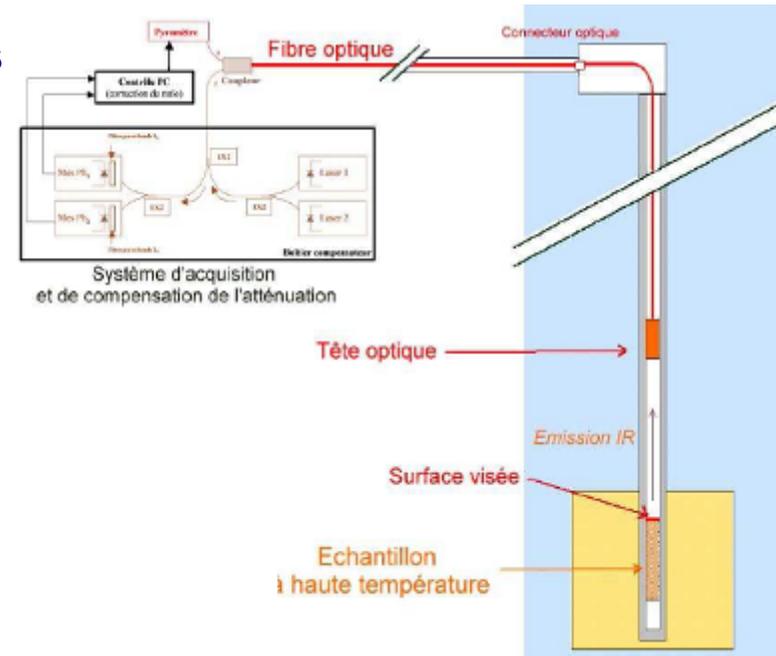
- Pyromètres infrarouges déportés

- *Stand by* – difficilement utilisable en réacteur et sur combustible

- Détecteur à Fusion DAF

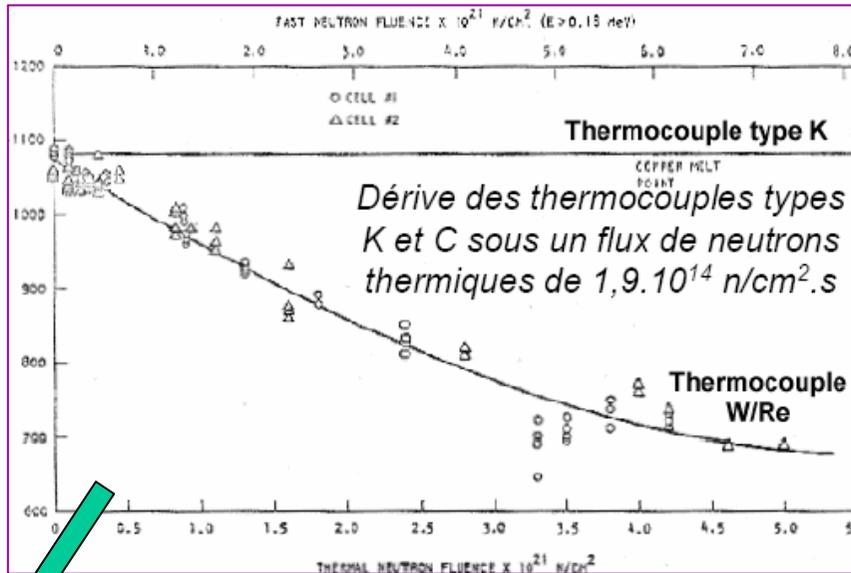
- *Contrôle de non dépassement d'une température*

- Thermomètre à expansion



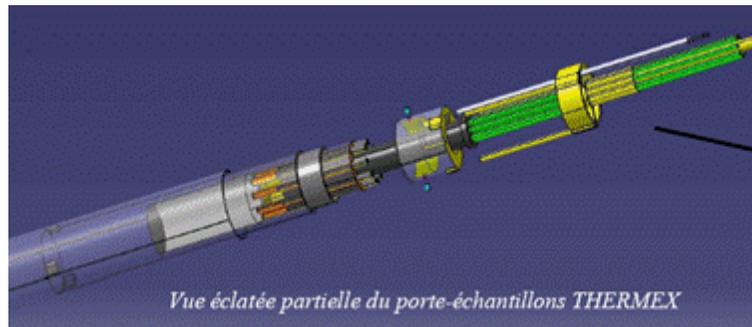
Essais d'endurance thermocouples K contact graphite 1100°C hélium (Données CEA - SIREN)

Techniques de mesure de température à cœur de combustible

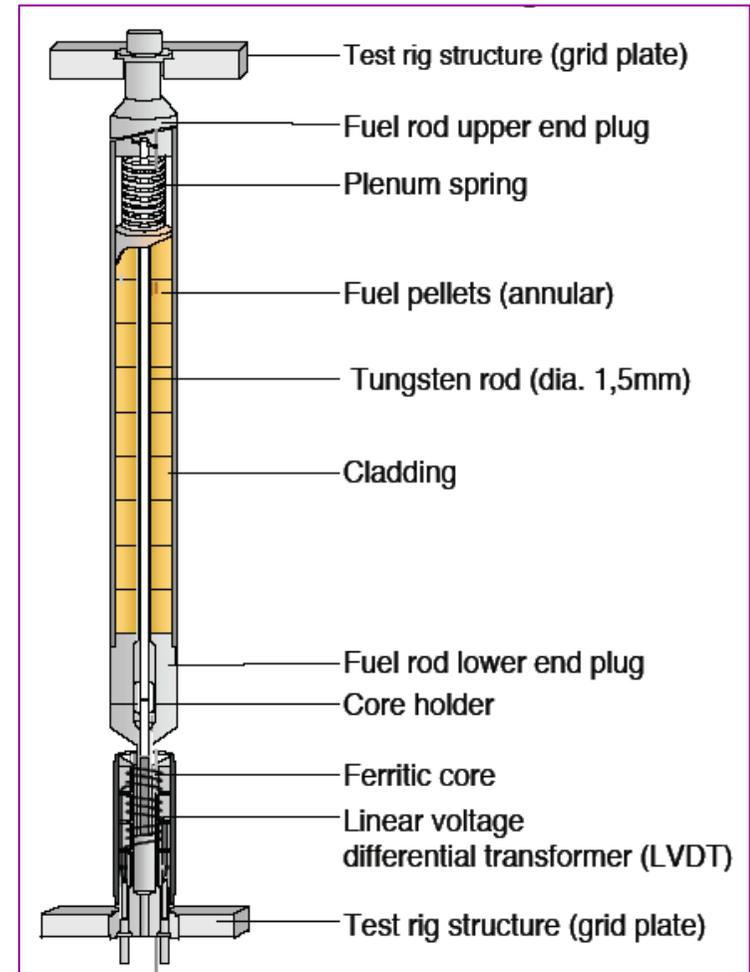


Dérive Type C : $-1^\circ\text{C} / 2 \cdot 10^{19}$ n/cm²
(transmutation W et Re)

Développement de thermocouple Mo/Nb
 → objectif irradiation longue durée / Haute T
 → Qualification sous Flux dans Osiris – Expérience THERMEX

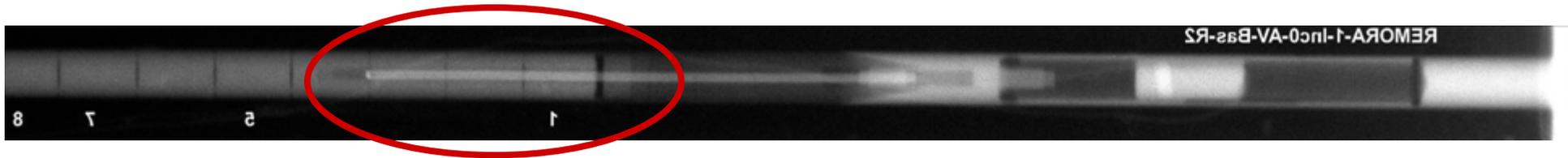


Thermomètre à expansion Développement IFE



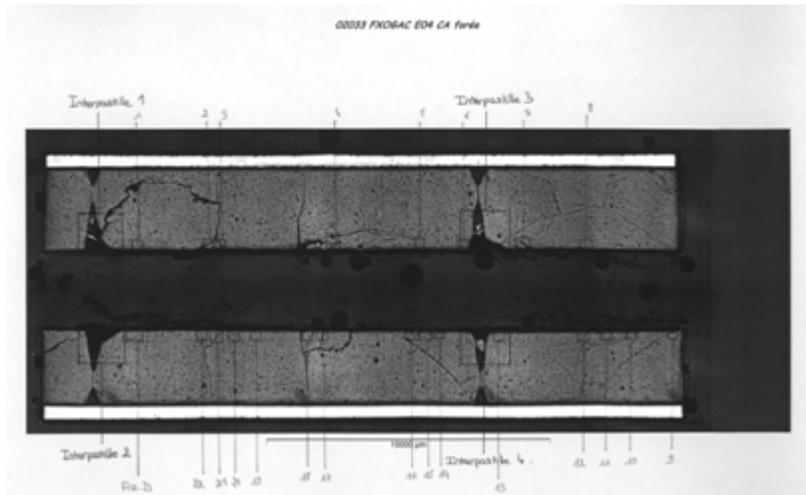
Techniques de mesure de température à cœur de combustible

Exemple de thermocouple à cœur sur un combustible REP : le crayon REMORA



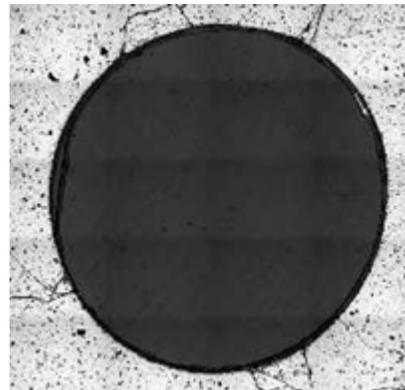
CEA/DEN

Procédé de forage des combustibles irradiés



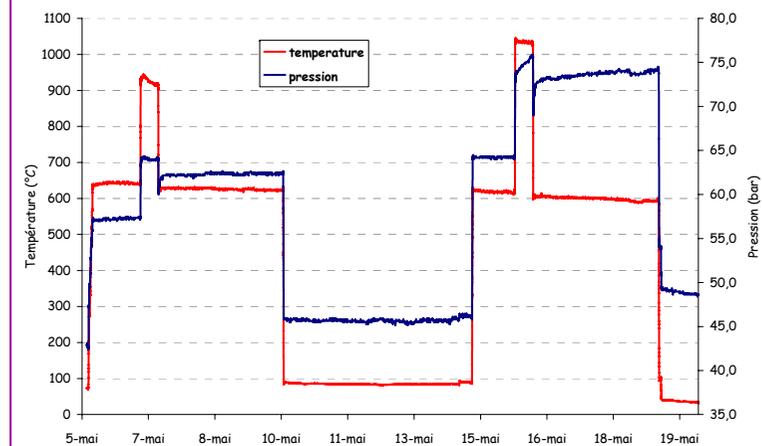
CEA/DEN

Résultat du forage



CEA/DEN

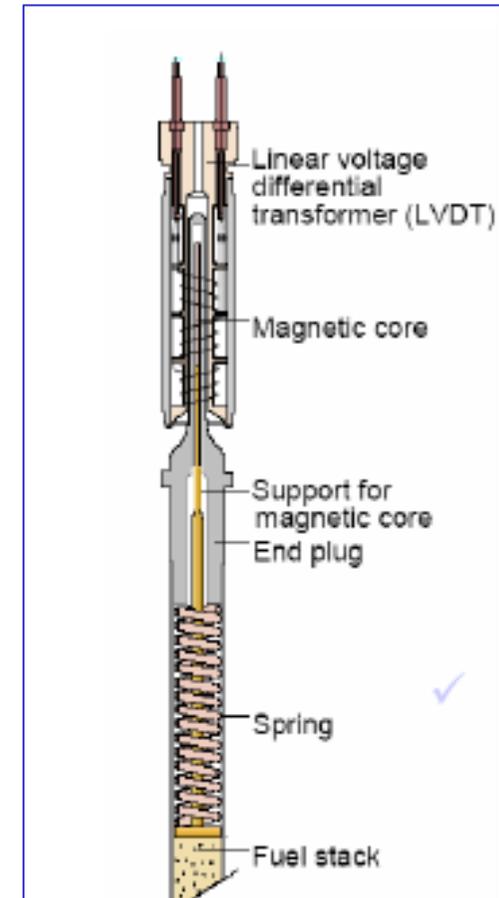
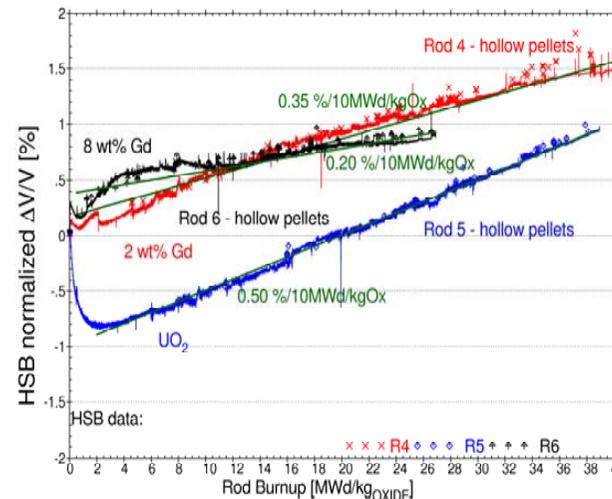
Thermocouple à cœur d'un combustible REP Exemple REMORA Type C : Incertitude $\leq 1,5\%$



Déformation axiale d'une colonne de combustible REL

↪ Déformation axiale: Mesures en ligne de l'élongation gaine et colonne combustible (thématique REP)

- La mesure de l'élongation colonne permet d'accéder à la densification et au gonflement du combustible sous irradiation, et leur conséquence sur le jeu pastille gaine et la température combustible
- La mesure de l'élongation gaine, couplée à la précédente, permet d'évaluer l'état de l'interaction combustible / gaine au cours de l'irradiation
- Capteurs implantés en extrémité de l'élément combustible
 - Technologie LVDT utilisée couramment
 - Gamme de mesure de quelques mm



Capteurs type LVDT
IFE Halden

Déformation diamétrale d'un crayon de combustible REL

Mesures en ligne de la déformations diamétrales de la gaine combustible

→ Etude des effets d'irradiation sur la déformation diamétrale de l'élément combustible

→ La mesure de la déformation diamétrale permet d'une part de fournir des données sur l'évolution de l'interaction pastille gaine pendant les transitoires, et d'autre part, des informations sur le fluage de la gaine. Ces données sont extrêmement précieuses pour la validation des codes de calcul simulant l'interaction pastille gaine

→ Réalisation de profilométries diamétrales sous flux

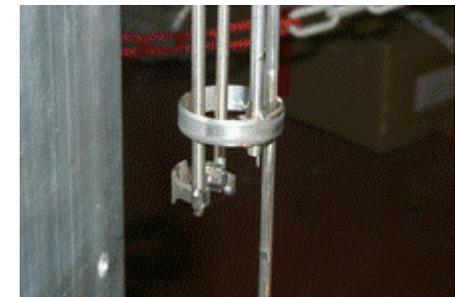
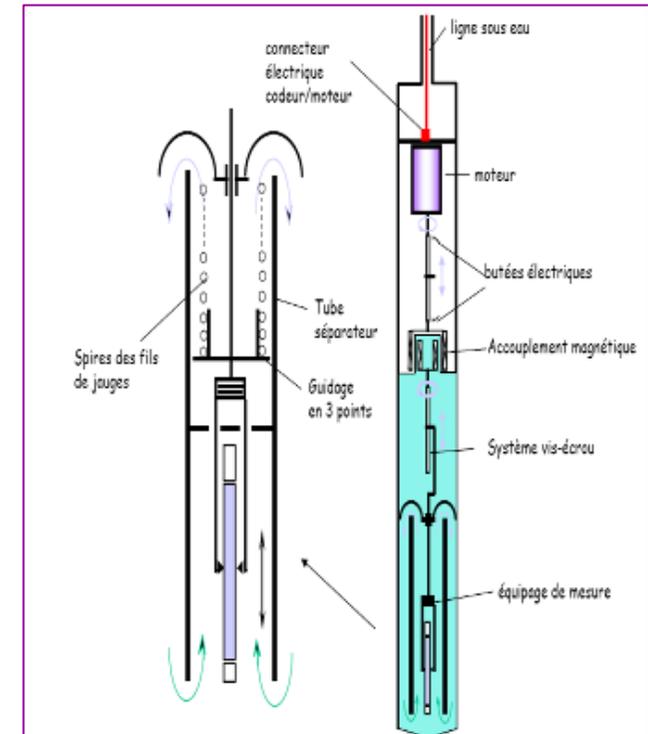
- Précision requise $\leq 10\mu\text{m}$
- Environnement : conditions caloporteur – sous flux neutronique et gamma

→ Expériences réalisées avec une technologie développée par le CEA → Porte Echantillon DECOR

- Utilisation de jauges de contrainte
- Très bons résultats sous flux

→ Technologies nouvelles mises en œuvre au CEA :

- Double LVDT (Contrat IFE Halden)
- Mesure dimensionnelles par voie optique



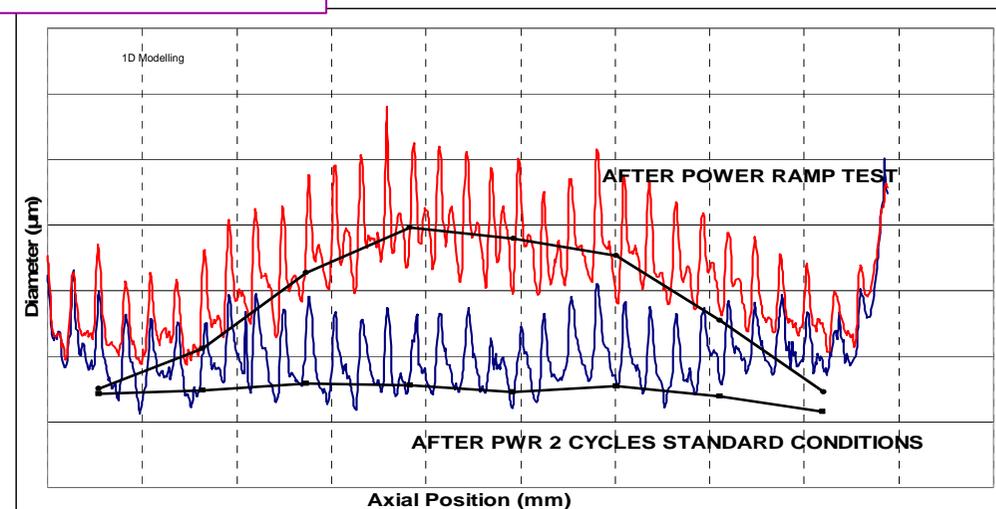
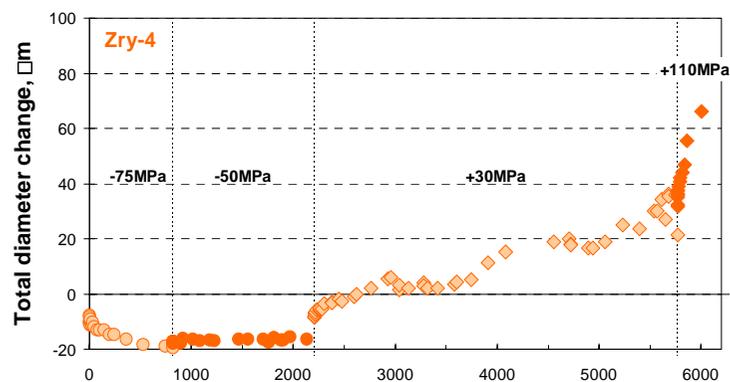
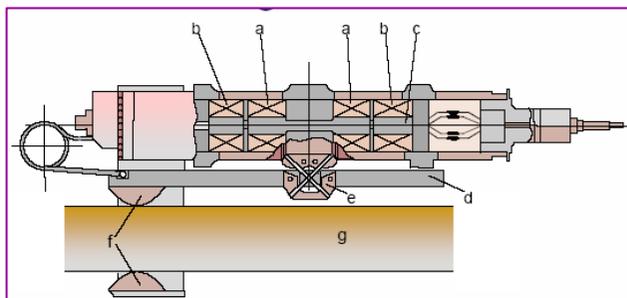
Porte Echantillon DECOR

Déformation diamétrale d'un crayon de combustible

Double LVDT (IFE Halden)

➔ Tests sous flux intense dans BR2

Mise en évidence d'une dérive nécessitant l'utilisation d'un second LVDT à noyau fixe pour conserver les performances d'origine



Thématique	Paramètre	Technologie OSIRIS	Autres capteurs	En développement
Comportement thermique du combustible	Température caloporteur	Type N ou K (T < 1000°C)		
	Température gaine	idem		
	Température combustible à cœur	TC type C (haute température mais dérive sous flux importante : irradiation courte)	Thermomètre à expansion (Halden)	TC Mo/Nb Thermométrie à ultrasons
Comportement thermomécanique du combustible	Élongation gaine	LVDT (ISABELLE 1)	LVDT (Halden)	Extensomètre optique fibré
	Élongation colonne combustible	-	LVDT (Halden)	
	Déformation diamétrale	-	Porte échantillon DECOR (SILOE et OSIRIS dans le passé) Double LVDT (Halden)	Double LVDT (Halden) Mesure dimensionnelle par voie optique

Comportement des gaz relâchés dans le combustible

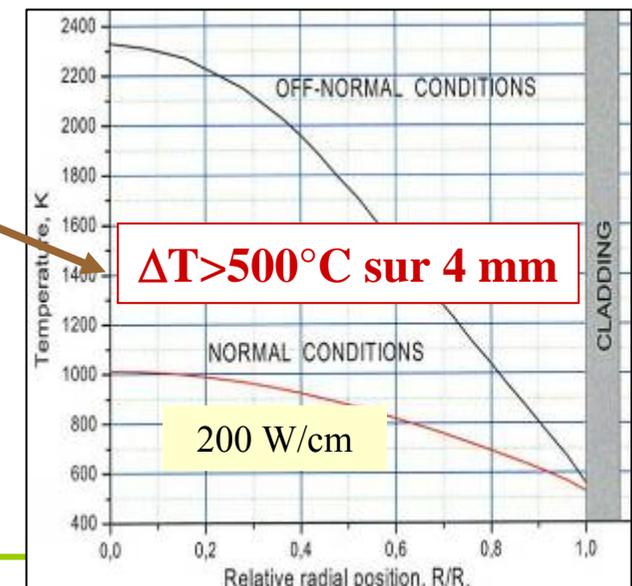
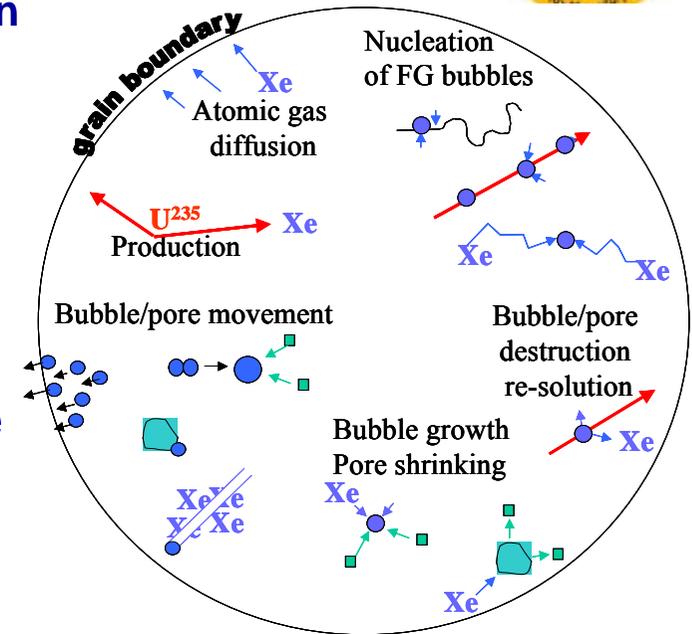


énergie atomique • énergies alternatives

La problématique des gaz de fission : création

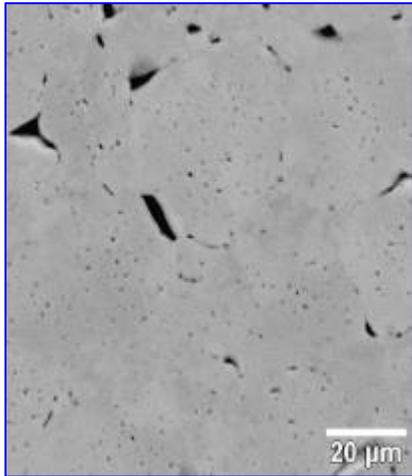
- ↪ 1 fission → 0.31 atomes de gaz rares Xe + Kr
 - ✓ Le gaz n'est pas soluble dans le combustible oxyde

- ↪ Importante quantité de gaz occlus dans le combustible
 - ✓ A 60 GWj/t (équivalent 5 ans en réacteur)
 - ☞ 1.6 cm³ (TPN) Xe+Kr / g (UO₂) (# isotopes stables)
 - ☞ # 3200 cm³ / crayon (env. 2 kg UO₂ par crayon)
 - ✓ Problématique de la migration des gaz de fission (RGF)
 - ☞ Diffusion sous gradient thermique
 - ☞ Volume libre interne faible (plénum #10 cm³)
 - ☞ Ex : Si 100 % RGF dans un volume libre de 15 cm³
→ plus de 500 bars à chaud (300°C) !!

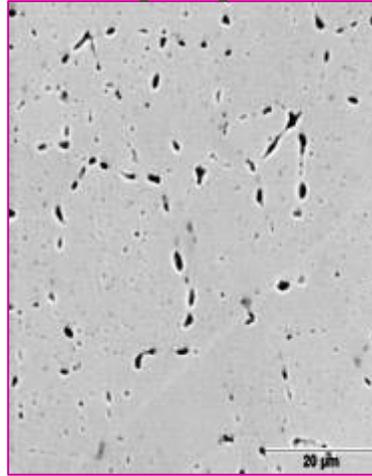


La problématique des gaz de fission : distribution dans le combustible

Echelle microscopique



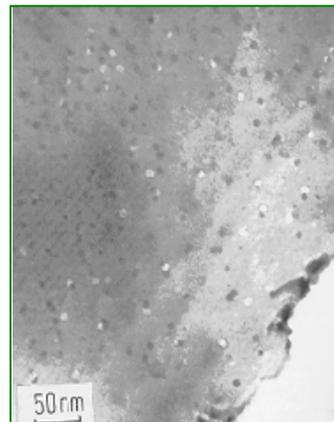
MEB
(centre
de
pastille)



Bulles de gaz intergranulaires
interconnectées

Bulles intragranulaires:
qqz dizaines de μm

Nanobulles
intragranulaires
2-20 nm



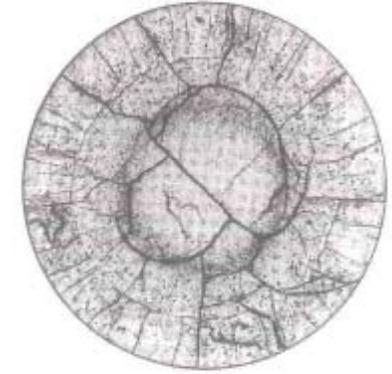
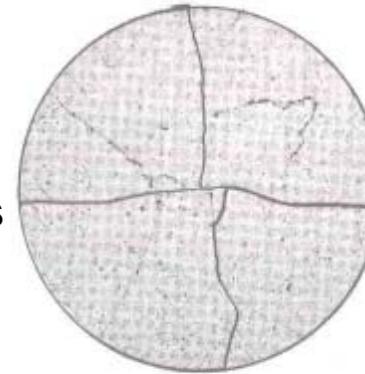
TEM

Echelle macroscopique

N macrofissures ~ P lin
Nominal # 8 fissures

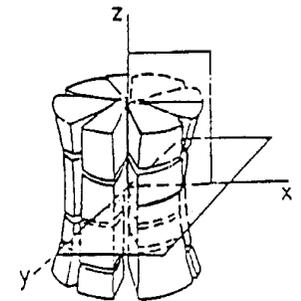
200 W/cm

450 W/cm



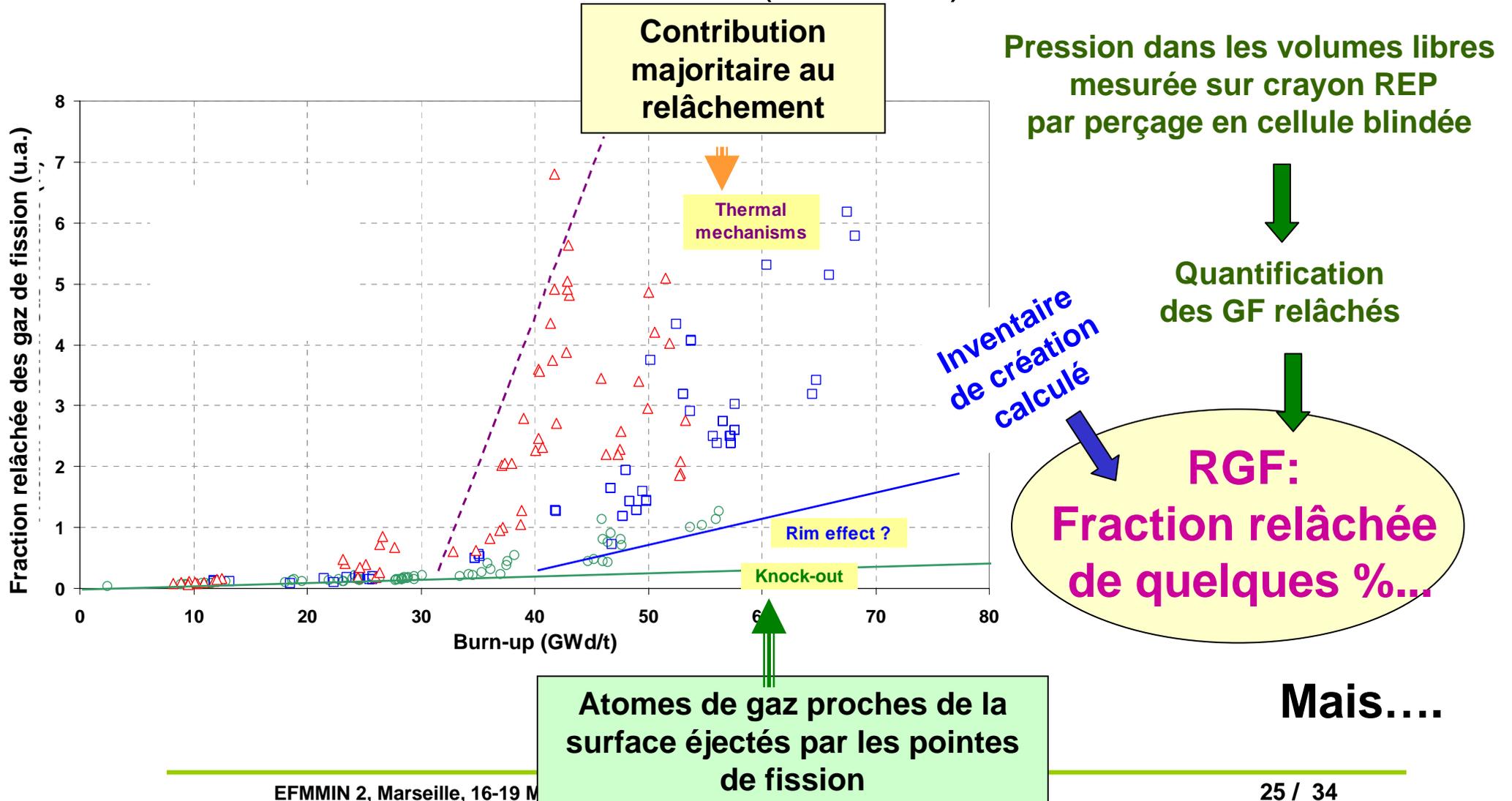
(a) après 1 cycle annuel d'irradiation en REP : fissures radiales

Canaux + Fissures
=
Chemins de sortie
pour les gaz de fission



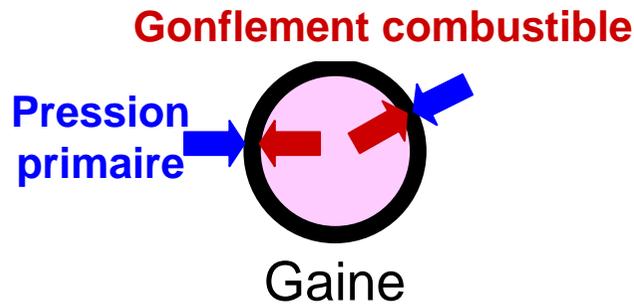
Relâchement des gaz de fission (RGF) hors de la pastille

Diffusion des atomes et des bulles ($T, \Delta T/\Delta x$)



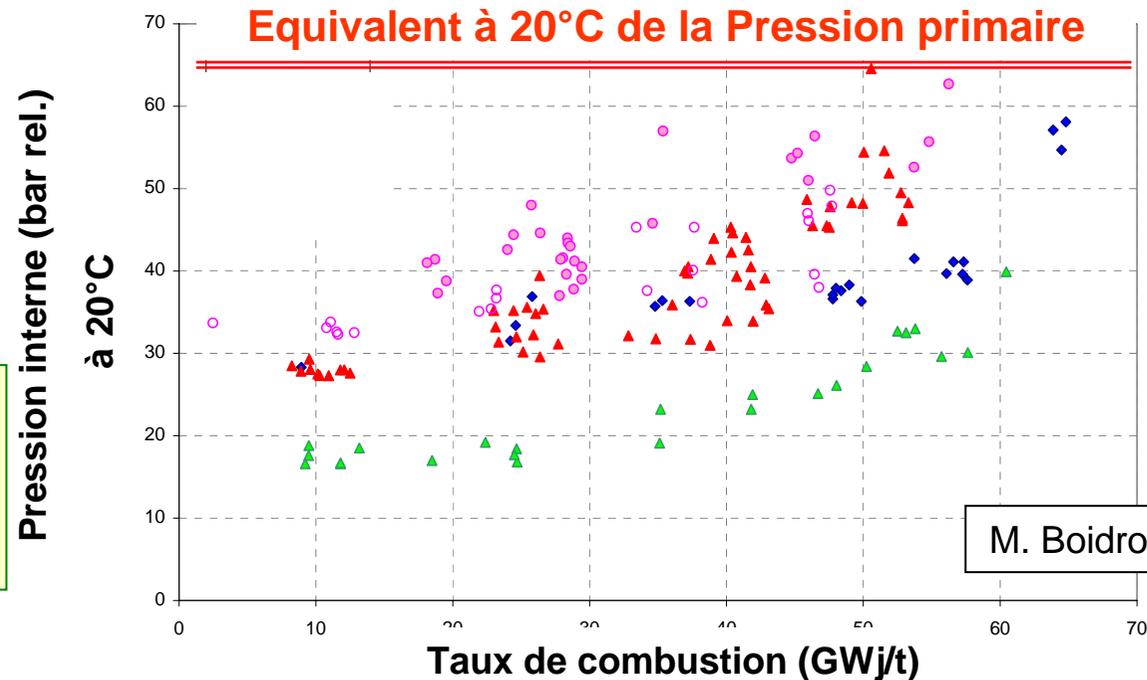
Augmentation de la pression interne dans les volumes libres

Critère de conception : la pression interne ne doit pas créer une contrainte mécanique dans la gaine provoquant par fluage une réouverture du jeu combustible-gaine (« lift-off »)



Paramètres:

- ✓ Pression initiale d'hélium
- ✓ Relâchement des GF+He



La pression interne limite, fonction du flux, de la température gaine, de la loi de fluage de la gaine peut-être supérieure à la pression caloporteur



Conséquences opérationnelles du relâchement des gaz de fission hors du combustible

- ↳ **Connaissance de la quantité totale de gaz relâchés (gaz de fission stables et radioactifs, hélium)**
 - ✓ Limitation de la durée d'utilisation des combustibles

- ↳ **Connaissance de la cinétique de relâchement**
 - ✓ Incidence sur la manœuvrabilité des réacteurs (vitesse de variation de puissance suite à une demande du réseau)
 - ✓ Effets des transitoires normaux et incidentels (classe 1 et 2)
 - ✓ Scenarii accidentels

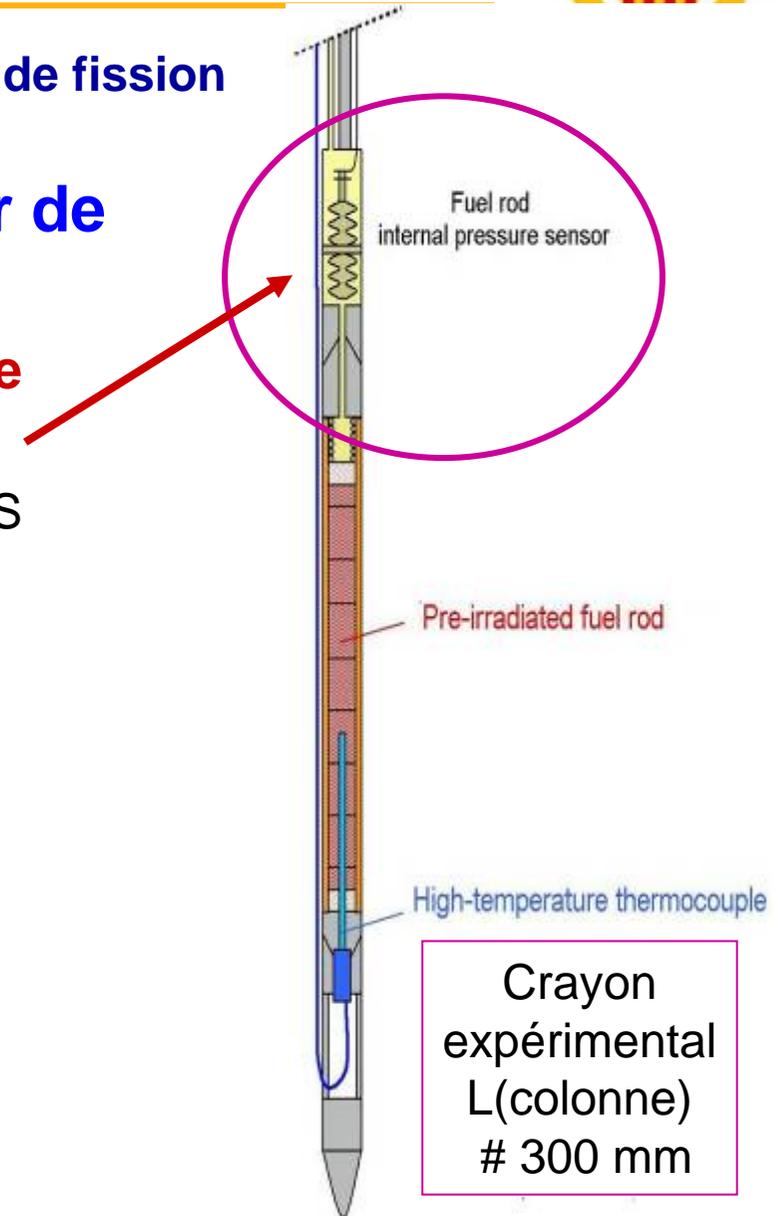
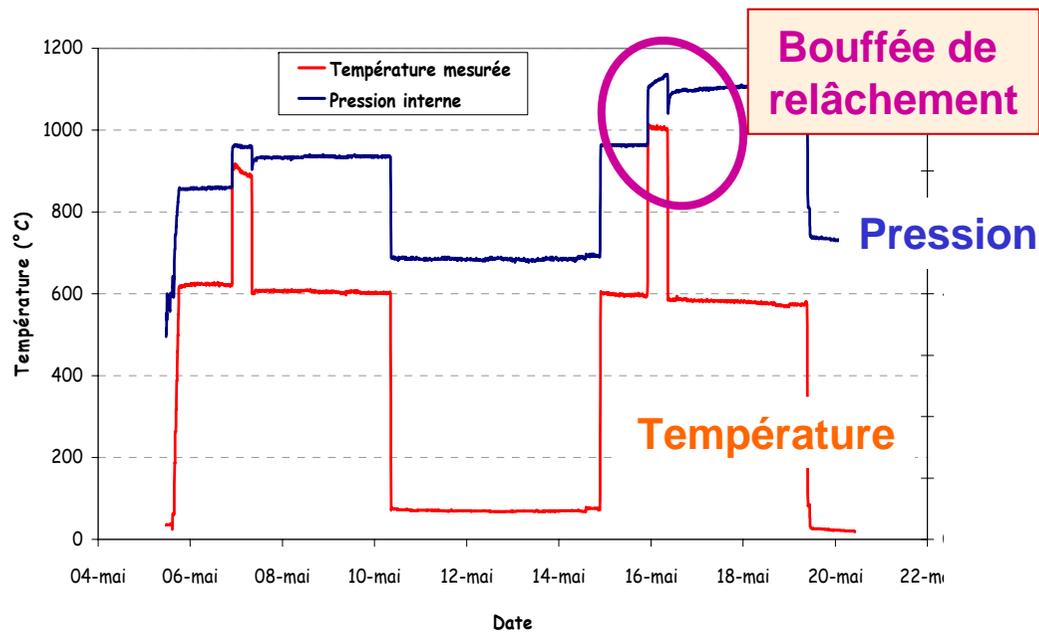
- ↳ **Connaissance de l'inventaire radiologique des gaz relâchés**
 - ✓ Inventaire radiologique « immédiatement disponible » en cas de perte d'étanchéité du crayon
 - ✓ Radioprotection et risque environnemental

Analyse in-situ et en ligne du relâchement des gaz de fission par mesure de pression totale

Techniques mises en œuvre en réacteur de recherche

✓ Capteur de pression absolue ou différentielle

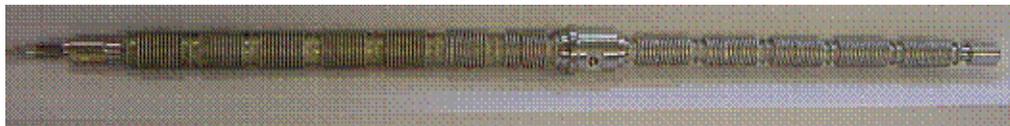
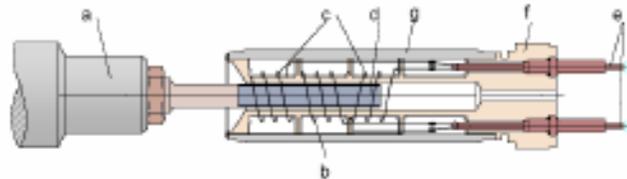
- ☞ Connecté au volume libre supérieur (plénum)
- ☞ Programme expérimental REMORA dans OSIRIS



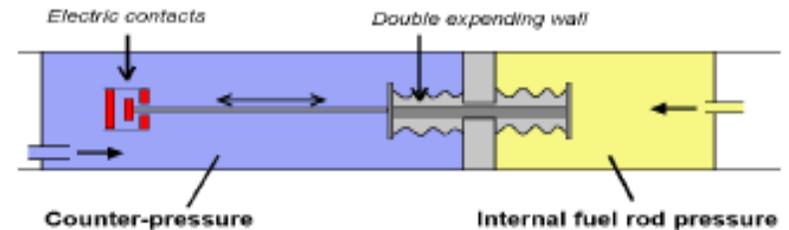
Techniques de mesure de la pression in-situ



Capteurs type LVDT
Contrat IFE Halden



Capteur de Pression à
Contre Pression REMORA
Développement CEA
Incertitude $\leq 0,5$ bars à 2σ



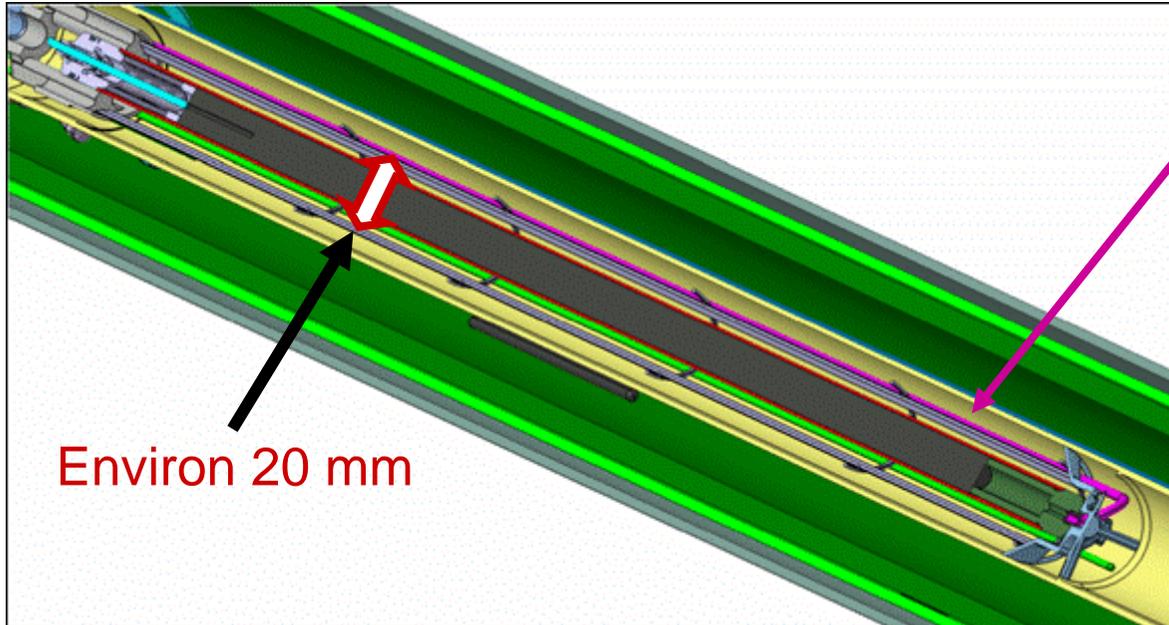
**Développement d'instrumentation en
pile innovante**

Ex. du capteur acoustique (priorité à la mesure
de composition du mélange gazeux)

$$v = \sqrt{\frac{\gamma \cdot R \cdot T}{M}}$$



Récupération des gaz de fission par balayage de l'échantillon

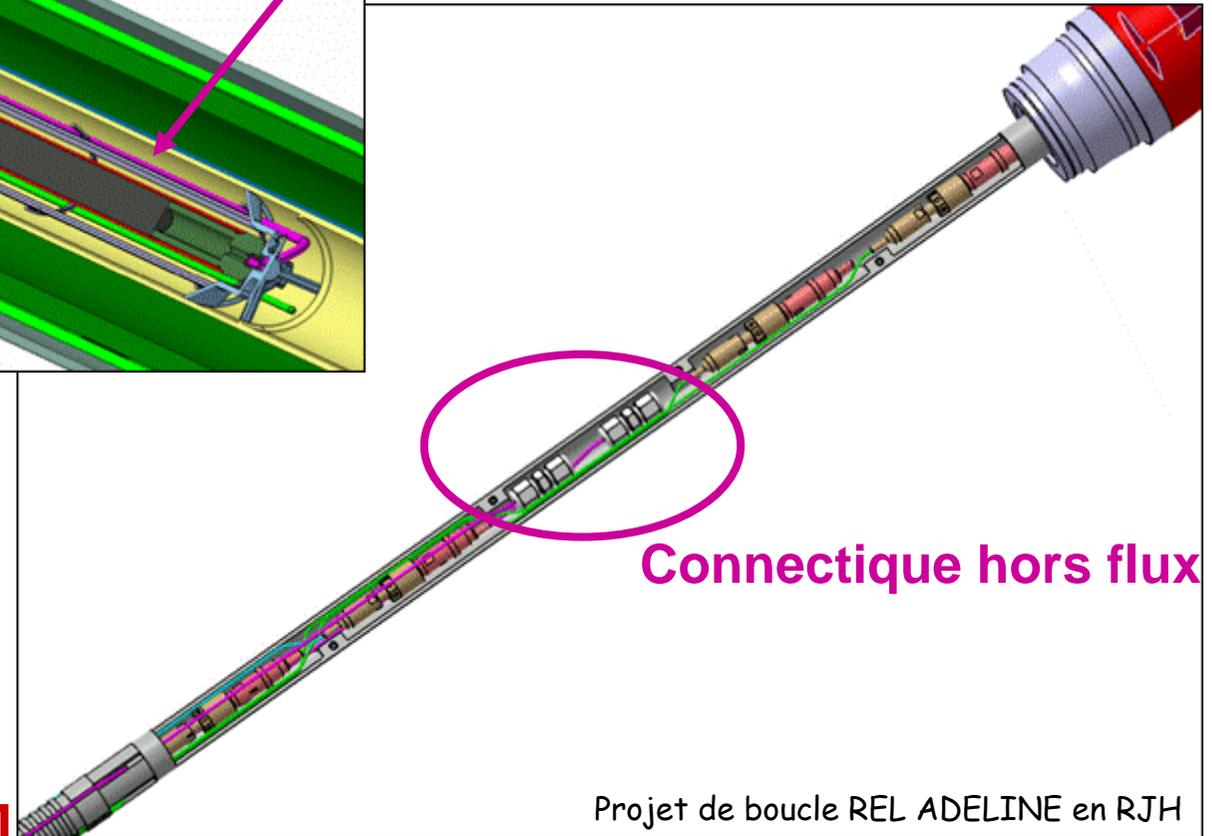


Minitubes (1,5*2 mm)

- ✓ Arrivée en bas de crayon
- ✓ Sortie au niveau du plénum sup.
- ✓ Balayage par gaz « neutre »

Milieu très contraint

- ✓ Place
- ✓ Fixations
- ✓ Débit de caloporteur.....



Mesure directe des isotopes des GF

Projet de boucle REL ADELINe en RJH

Analyse des gaz de fission

↪ Comptage des atomes radioactifs

- ✓ Grande sensibilité par méthode de spectrométrie gamma (en ligne ou en différé sur échantillon)
- ✓ Limité aux isotopes radioactifs
- ✓ Contraint le protocole expérimental et les mesures post-essai (la plupart des isotopes gazeux ont moins de 10 h de demi-vie)

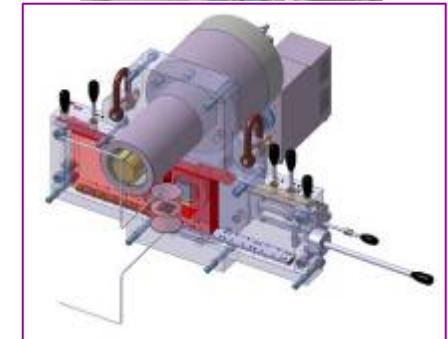
Postes de spectrométrie gamma
Expériences HTR

Sirocco dans OSIRIS et AGR-2 dans
ATR(INL)



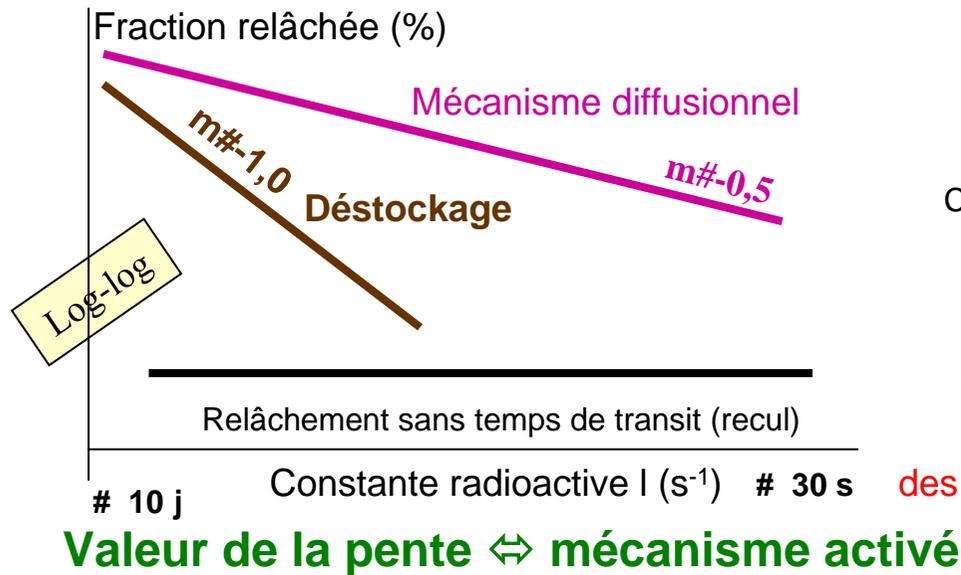
↪ Comptage des atomes stables

- ✓ Chromatographie => résultat seulement élémentaire (He, Kr, Xe)
- ✓ Spectrométrie de masse : présentation université de Provence

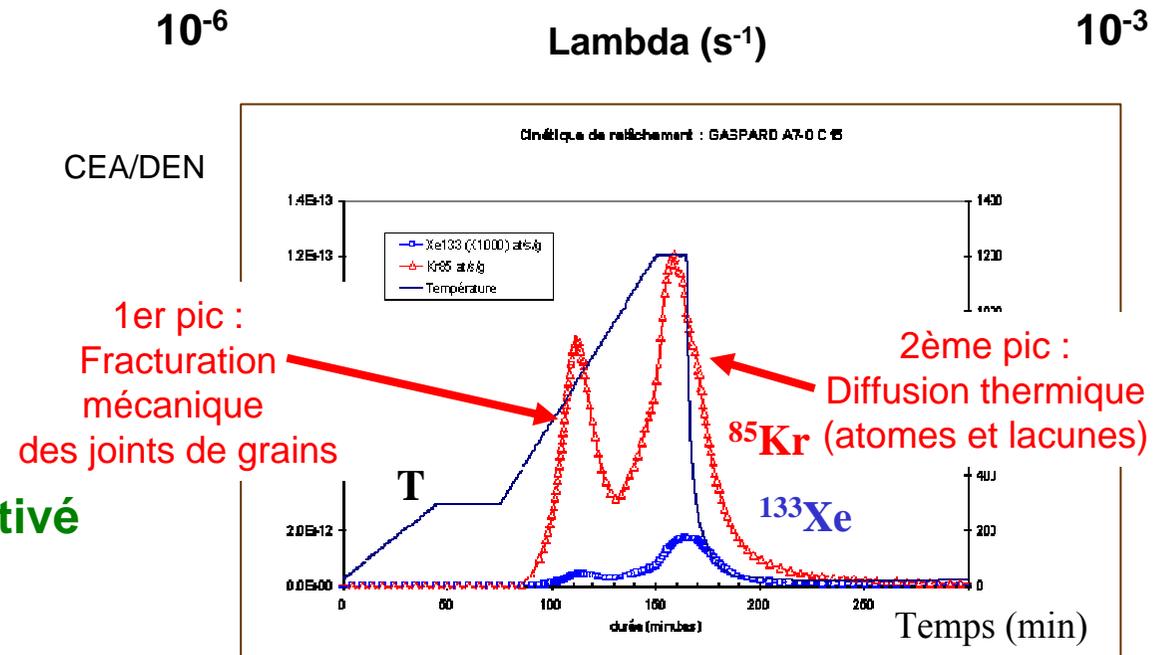


Analyses du niveau et de la cinétique de relâchement des gaz de fission

→ Relâchement vs demi-vie



→ Relâchement vs température (mécanismes « à seuil »)



Exemple d'un essai GASPARD en cellule blindée

Thématique	Paramètre	Technologie OSIRIS	Autres capteurs	En développement
Comportement des gaz relâchés dans le volume libre du crayon combustible	Pression dans l'aiguille	CPCP (Capteur de Pression à Contre Pression)	LVDT (Halden) mais inconvénient de dérive sous flux en début de vie nécessitant des phases de calibration sous flux contraignantes en début d'expérience	Capteur acoustique : précision non encore acceptable actuellement, à améliorer
	Inventaire des gaz relâchés	Capteur acoustique : discrimination hélium de Xe/Kr dans le cas des MOX	Spectrométrie gamma en ligne	La méthode acoustique est en cours de développement
	Cinétique de relâchement des gaz	CPCP et Capteur acoustique associé à de la modélisation fine (volumes libres et thermique des gaz)	LVDT (pour la pression)	Dans le cas des MOX, travaux en cours pour valider l'hypothèse d'homogénéité du mélange au niveau du capteur

- ↪ Les mesures en ligne sur échantillon de combustible en réacteur sont une valeur ajoutée **déterminante** pour la qualité scientifique du processus d'irradiation en réacteur de recherche
 - ✓ **Pilotage de l'expérience**
 - ✓ **Suivi du comportement de l'échantillon**
 - ✓ **Accès aux phénomènes transitoires et aux cinétiques (effets seuil...)**
 - ✓ **Données d'entrée indispensables aux modèles, avec maîtrise de l'incertitude**

- ↪ Ils permettent d'accéder facilement et rapidement à des paramètres scientifiques non accessibles ensuite en mesure post-essai
 - ✓ **Mesure non représentative après « retour à froid » de l'échantillon**
 - ✓ **Perte de la géométrie d'un échantillon fragile après manutention**
 - ✓ **Produits de fission radioactifs à demi-vies courtes**

- ↪ Ils participent à l'offre de service du réacteur expérimental et font souvent la différence vis-à-vis de la qualité de l'offre => succès commercial

- ↪ Ils sont complétés par des examens non destructifs et destructifs dans le réacteur expérimental lui-même ou en laboratoire de haute activité