

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

DIVISION de METALLURGIE et d'ETUDES
des COMBUSTIBLES NUCLEAIRES

DEPARTEMENT DE TECHNOLOGIE

FR8101794

Conférence sur la caractérisation et le contrôle de
qualité des combustibles nucléaires.

Karlsruhe, RFA, 2 - 5 Juin 1981.

CEA - CONF 5760

COMBUSTIBLE CAMEL POUR REACTEURS DE RECHERCHE :
EXPERIENCE ACQUISE EN FABRICATION, CONTROLES ET IRRADIATION
DU COEUR D'OSIRIS

Ghislain de CONTENSON^(*), Henri FOULQUIER^(*), Maria TROTABAS^(*), Nicole VIGNESOULT^(**)

Jean-Marie CERLES^(***) Agents C.E.A.

Jacques DELAFOSSE^(****) TECHNICATOME (Saclay)

Centre d'Etudes Nucléaires de SACLAY - 91190 GIF-sur-YVETTE CEDEX - (France)

(*) Dtech/SECS/SEECRE (**) Dtech/SECS/SELECT (***) CENS/SPS/OSIRIS

(****) TA/DIVET - TECHNICATOME - 91190 GIF-sur-YVETTE CEDEX - (France)

RESUME :

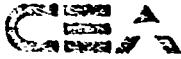
L'un des aboutissements des différentes actions menées en France concernant la conception, la fabrication et le développement des combustibles nucléaires a été la mise au point par le CEA d'un combustible de type plaque (combustible CAMEL) susceptible d'être adapté à différentes catégories de réacteurs à eau (réacteur de puissance, propulsion navale, chauffage urbain, pile de recherche). Ces travaux ont été couronnés par la réalisation de tout un cœur et des recharges du réacteur de recherche à hautes performances, Osiris à Saclay. L'ancien combustible en alliage U-A₂ fortement enrichi a été remplacé par un combustible caramel de faible enrichissement (7 %), non proliférant. Ce nouveau cœur fonctionne avec satisfaction depuis Janvier 1980.

Après une brève description des caractéristiques du combustible caramel et de ses principaux avantages, on présente sa fabrication ainsi que l'ensemble des contrôles de qualité auxquels il est soumis. Le programme de qualification ainsi que les principaux résultats qui en ont été tirés sont exposés. On décrit

CENTRE D'ETUDES NUCLEAIRES DE SACLAY
91191 GIF-sur-YVETTE CEDEX

également le programme de suivi du combustible en pile dont le but est de s'assurer du bon comportement du combustible sous irradiation.

Le bon fonctionnement d'Osiris, qui a terminé 11 cycles d'irradiation le 21 Avril 1981 a permis de montrer le bien fondé des choix effectués et l'excellent comportement de l'élément combustible dans les conditions pourtant sévères d'un réacteur de recherche à hautes performances.



COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

DIVISION de METALLURGIE et d'ETUDES
des COMBUSTIBLES NUCLEAIRES

DEPARTEMENT DE TECHNOLOGIE

CONFERENCE SUR LA CARACTERISATION ET LE CONTROLE DE QUALITE DES COMBUSTIBLES NUCLEAIRES

KARLSRUHE (RFA) - 2/5 Juin 1981

COMBUSTIBLE CARAMEL POUR REACTEURS DE RECHERCHE :
EXPERIENCE ACQUISE EN FABRICATION, CONTROLES ET IRRADIATION
DU COEUR D'OSIRIS

Ghislain de CONTENSON^(*), Henri FOULQUIER^(*), Maria TROTABAS^(*), Nicole VIGNESOULT^(**)
Jean-Marie CERLES^(***) Agents C.E.A.
Jacques DELAFOSSE^(****)

Centre d'Etudes Nucléaires de SACLAY - 91190 GIF-sur-YVETTE CEDEX - (France)

(*) DTech/SECS/SEECRE (**) DTech/SECS/SELECI (***) CENS/SPS/OSIRIS

(****)TA/DIVET - TECHNICATOME - 91190 GIF-sur-YVETTE CEDEX - (France)

1 - INTRODUCTION

Le Commissariat à l'Energie Atomique développe depuis environ 12 ans, un combustible UO_2 , gainé zircaloy, en plaques dit "CARAMEL". Un élément combustible Caramel se présente sous forme d'une plaque constituée de deux tôles en zircaloy formant couvercles entre lesquelles se trouvent emprisonnées les plaquettes d' UO_2 , disposées elles-mêmes dans les alvéoles d'une grille. La géométrie plane constitue un moyen efficace de tourner l'inconvénient que présente la mauvaise conductibilité de l'oxyde d'uranium en permettant d'allier une haute puissance spécifique à une faible température du combustible.

Les principaux avantages d'un tel combustible peuvent se résumer ainsi :

1) C'est un combustible non proliférant. Il peut être utilisé dans des réacteurs de recherche exigeant des puissances volumiques et des flux neutroniques élevés, avec un enrichissement nécessaire largement

CENTRE D'ETUDES NUCLEAIRES DE SACLAY
91191 GIF-sur-YVETTE CEDEX

inférieur à 20 % en ^{235}U considéré comme limite supérieure de non prolifération.

Les différences de masses spécifiques entre UO_2 et U-Az , respectivement $10,3 \text{ g/cm}^3$ et $1,6 \text{ g/cm}^3$ conduisent à une charge en uranium plus forte, ce qui permet d'abaisser l'enrichissement à un niveau compris entre 3 et 10 %.

2) Un deuxième avantage du combustible Caramel réside dans sa sûreté d'utilisation. Du fait de sa dispersion, une perte d'étanchéité éventuelle ne met en contact avec le réfrigérant qu'une faible quantité de matière fissile, ce qui limite la contamination éventuelle du circuit primaire.

La température de fonctionnement largement inférieure à celle du début de dégagement des gaz de fission constitue un autre facteur de sûreté.

Le combustible Caramel peut être utilisé dans différents types de réacteurs dont les caractéristiques sont résumées ci-après.

Réacteur	Puissance MW	Épaisseur Caramel mm	Température gaine °C	Pression réfrigérant bars	Puissance Spécifique moy. W/cm^3	Puissance Spécifique max. W/cm^3
Pile piscine (OSIRIS)	70	1,45	140	3	1640	4300
Calogène (THERMOS)	100	2,25	160	11	275	1070
(CAS) Chaudière avancée de Série	330	2,25 ou 4	300 ou 336	150	350 ou 405	500 550

Notons, que ce sont les conditions de fonctionnement de la pile Osiris qui sont les plus sévères car elles allient la faible pression du

réfrigérant avec la forte puissance spécifique.

Les premières études réalisées au CEA étaient orientées vers des applications dans les réacteurs électrogènes, calo-gènes et de propulsion navale et s'accommodaient des Caramels de forte épaisseur (4mm) en raison des puissances volumiques nécessaires limitées.

Les Caramels mincés, étudiés depuis 1977 dans le cadre du programme international de non prolifération (INFCE), ont trouvé leur application dans les réacteurs de recherche pour lesquels les puissances volumiques sont très élevées (valeur moyenne 1700 W/cm^3 environ, valeur max. 4300 W/cm^3).

Grâce à l'emploi du combustible Caramel à uranium faiblement enrichi, le Commissariat à l'Energie Atomique a réalisé une première conversion du coeur du réacteur de recherche à hautes performances, Osiris à Saclay. Le nouveau coeur à combustible Caramel fonctionne avec succès depuis Décembre 1979.

2 - DESCRIPTION

L'élément combustible Osiris type Caramel se présente sous forme d'une plaque de 700mm de long, 80mm de large et 2,25mm d'épaisseur. La fig. 1 représente les différents constituants d'une plaque Caramel du réacteur Osiris. Le combustible en UO_2 fritté à une forme de parallélépipède à section carrée $17,1 \times 17,1\text{mm}$ et d'épaisseur 1,45mm. Il est disposé dans des alvéoles d'une grille et enfermé entre deux tôles en zircaloy. Un tel ensemble, muni de pièces de rives et d'extrémités, en zircaloy, subit une série d'opérations de soudage visant à assurer l'étanchéité parfaite de chaque plaquette d' UO_2 vis à vis de l'extérieur et vis à vis de ses voisines.

En même temps on réalise un bon contact entre l'oxyde et la gaine. Les faisceaux sont constitués de plusieurs plaques (14 ou 17) en position parallèle, maintenues solidaires par des plaques de rives rainurées. Ils sont équipés d'un pied pour l'alimentation en eau et d'une tête pour la manutention.

Le combustible Caramel se distingue de l'élément combustible à crayons par :

- 1) Sa géométrie plane
- 2) L'absence de volume libre
- 3) Un bon contact entre l'oxyde et la gaine (absence de jeu)

Les particularités du combustible Caramel imposent des conditions de fonctionnement particulières. Compte tenu de l'absence de volume libre (excepté la porosité ouverte du combustible), il convient de ne jamais dépasser la température du début du dégagement des gaz des fissions. Pour cela, il est essentiel de disposer dès le départ et de conserver durant toute la vie de l'élément combustible un excellent contact entre l'oxyde et sa gaine.

3 - FABRICATION ET CONTROLE DE LA QUALITE

3.1. Fabrication

La fabrication du combustible Caramel est effectuée dans des ateliers appartenant au CEA ou à ses filiales. Certains "éléments" comme les tôles de zircaloy, des pièces moulées ou usinées sont fournies par l'industrie. Le schéma de fabrication est représenté sur la fig. 2.

On peut distinguer les phases de fabrication suivantes :

1) Fabrication des plaquettes d'oxyde (Caramels). Les plaquettes d'oxyde sont fabriquées par frittage à partir d'une poudre UO_2 , obtenue par voie humide. Le procédé utilisé est celui du double cycle normal (DCN).

Le frittage s'effectue sous hydrogène à une température proche de $1600^{\circ}C$. La densité du Caramel fritté est égale à 94 % de la densité théorique.

Il convient de noter que les fabrications des combustibles Caramel bénéficient de l'expérience acquise dans ce domaine pour les combustibles des PWR.

a) Dépôt de barrière anti-diffusion

Chaque Caramel est recouvert d'une couche de chrome déposée par pulvérisation cathodique. Ce chrome joue le rôle de barrière en empêchant la diffusion de l'oxygène dans le zircaloy qui pourrait avoir lieu pendant l'opération de soudure par diffusion appelée aussi "marmitage" et décrite ci-après.

2) Fabrication des plaques

Les éléments constitutifs d'une plaque sont les suivants (fig. 1) :

- a) Plaquettes d'oxyde
- b) Grille en zircaloy obtenue par soudage à partir des fils en zircaloy
- c) Embout en nickel qui joue un rôle sur le plan neutronique
- d) Pièces latérales en zircaloy
- e) Pièces d'extrémités en zircaloy
- f) Gaine en tôle de zircaloy

Les Caramels sont disposés dans les alvéoles de la grille. L'ensemble comprenant la grille avec son chargement de Caramels, les pièces latérales, les pièces d'extrémités et l'embout est placé entre deux tôles en zircaloy et soudé de façon étanche. Les opérations de fermeture des plaques sont réalisées dans l'ordre suivant :

Après pointage par soudure par résistance des différentes pièces, les rives sont soudées avec une soudeuse à résistance à la molette.

Les pièces d'extrémités sont soudées ensuite par bombardement électronique qui assure aussi la mise sous vide de l'ensemble. La plaque ainsi fermée est transférée dans une enceinte de soudage par diffusion et subit un traitement à haute température $> 800^{\circ}\text{C}$ et forte pression (≈ 1000 bars) pendant 4 heures appelé aussi "marmitage". Ce traitement assure la soudure de tous les composants en zircaloy et spécialement entre les grilles et les tôles en réalisant la séparation de chaque plaquette d' UO_2 et un bon contact entre l'oxyde et la gaine.

Ce traitement de maritage est suivi par un traitement de contrôle réalisé sous vide à 700°C.

Les plaques brutes sont alors usinées pour correspondre aux dimensions exigées. Après avoir subi les contrôles décrits au paragraphe suivant, elles sont montées sur des crémaillères. La soudure par bombardement électronique assure la liaison entre les plaques Caramels et les crémaillères.

3.2. Contrôle de la qualité

L'ensemble des matériaux et des composants doit satisfaire aux exigences des spécifications.

Du fait de ses caractéristiques géométriques et de ses conditions de fonctionnement, le combustible Caramel doit répondre à des exigences propres particulièrement sévères, auxquelles correspondent des contrôles spécifiques.

Ces contrôles s'effectuent à tous les niveaux de la fabrication et concernent notamment :

- la métrologie des composants et de l'assemblage (e.g. la métrologie des canaux)
- l'enrichissement de chaque plaquette combustible
- la qualité des soudures entre éléments métalliques
- la qualité du contact entre l'oxyde et la gaine enveloppe

Ces contrôles interviennent au cours de la fabrication de la façon suivante :

a) Contrôles au niveau de la fabrication des éléments de base

Plaquette UO_2 : Métrologie (longueur, largeur, épaisseur, densité aspect visuel, contrôle du dépôt de chrome)

Les défauts de surface, tolérables, ont été définis sur la base de corrélations entre les dimensions du défaut et l'épaisseur résiduelle de la gaine après la soudure par diffusion.

Pièces en Zy : Métrologie

état de surface après abrasion

b) Contrôles au niveau de la plaque finie

- aspect visuel
- métrologie
- contrôle de l'absence des gaz occlus par traitement thermique à 700°C sous vide, les plaques étant libres
- contrôle de la qualité des soudures par micrographie et test de corrosion
- contrôle d'enrichissement

Le contrôle d'enrichissement des plaques "Caramel" consiste en la détermination de la charge surfacique en ^{235}U par neutronométrie. Ce contrôle présente plusieurs avantages :

- contrôle global des différentes tolérances de fabrication des Caramels :
 - . enrichissement
 - . titre de l'uranium dans l' UO_2
 - . densité du fritté UO_2
 - . épaisseur du Caramel
- possibilité d'un contrôle systématique de toutes les plaquettes composant une plaque combustible
- rapidité de contrôle devant les méthodes classiques
- mesure exacte des cumuls des fourchettes de fabrication
- contrôle d'une caractéristique (charge surfacique en ^{235}U) directement exploitable pour le calcul des performances du réacteur
- Contrôle de la qualité du contact oxyde-gaine

La qualité du contact oxyde-gaine apparaît comme un paramètre important de la conception du combustible Caramel. Une méthode d'analyse thermique par thermovision infra-rouge a été mise au point.

Cependant, elle n'est pas utilisée de façon systématique car le test réalisé à 800°C sous vide permet d'éprouver les plaques dans des conditions qui sont plus sévères que celles du fonctionnement en pile piscine. Ce test s'est avéré jusqu'à présent très satisfaisant.

c) Contrôle au niveau de l'assemblage fini

- métrologie hors tout de l'assemblage (passage dans un gabarit)
- métrologie de tous les canaux
- contrôle de la pollution superficielle

Les contrôles et la réception finale sont assurés par un organisme qui est indépendant du fabricant du combustible. De plus un système d'assurance qualité est mis en place et s'exerce au niveau des études, de la réalisation et des essais.

Expérience de fabrication

On dispose d'une large expérience de fabrication car en dehors des fabrications pour irradiations expérimentales, on a réalisé un grand nombre d'assemblages comme résumé ci-après.

Réacteur	Nombre d'assemblages	Nombre de plaques	Nombre de plaquettes en UO ₂	Poids UO ₂ kg
PAT	16	576	101 952	1 497
CAP	4	44	13 728	9 630
OSIRIS	200	3 400	462 400	2 019
TOTAL	220	4 020	578 080	13 146

Actuellement, la capacité de l'ensemble des ateliers de fabrication est de 200 assemblages type OSIRIS par an.

4 - QUALIFICATION DU COMBUSTIBLE CAMEL

Un vaste programme d'expérimentation et de qualification du combustible Camel a été entrepris et exécuté dans un large domaine de puissances spécifiques et de taux de combustion. Son but était de déterminer en premier les limites technologiques puis les zones de fonctionnement sûres et fiables de ce type de combustible. Le programme comprend à la fois des essais paramétriques en boucles d'essais d'irradiation sur éprouvettes comportant un nombre de Camels limité et également des irradiations d'assemblages expérimentaux effectuées dans la pile Osiris et dans les réacteurs prototypes CAP et PAT.

Les résultats obtenus concernent :

- . la conductibilité thermique de l'oxyde d'uranium en fonction du taux de combustion
- . la détermination de la température limite de fonctionnement normal
- . la température limite des séparateurs
- . les limites de fonctionnement en exploitation pour les deux épaisseurs de 3 et 4mm

La fig. 3 donne l'exemple de limite de fonctionnement pour un Camel de 4mm d'épaisseur, jusqu'à une combustion massique de 50000 Mj/tU. En connaissant la température limite de fonctionnement de combustible, il est possible de transposer ces résultats à d'autres géométries de Camels. Ainsi, dans le cas du réacteur Osiris, les puissances spécifiques limites seraient supérieures à 5000 W/cm^3 . A titre d'exemple les puissances spécifiques maximales de fonctionnement d'Osiris sont d'environ 4000 W/cm^3 jusqu'à la combustion massique de 20000 Mj/tU. Elles décroissent ensuite pour n'être que de 2500 W/cm^3 au taux de combustion maximal qui est de 30000 Mj/tU.

Le démarrage du coeur d'Osiris a été précédé par la qualification sous irradiation dans l'ancien coeur de trois assemblages précurseurs. Ces essais ont largement couvert l'ensemble des conditions de fonctionnement d'Osiris.

Un essai de sûreté, appelé Carine, en boucle indépendante a également été réalisé [1]. Il a permis de suivre l'évolution d'une rupture volontaire de gaine ainsi que le relâchement des produits de fission dans le circuit primaire. L'activité a atteint le seuil de détection après une centaine d'heures de fonctionnement. Le fonctionnement s'est poursuivi dans ces conditions pendant près de 2 heures. Malgré cela, on a constaté un niveau très faible d'activité des radionucléides significatifs d'un relâchement du combustible. En outre, les examens effectués sur l'élément combustible d'essai après irradiation ont montré l'absence d'évolution appréciable de l'orifice initialement percé et du combustible sous-jacent.

Cet essai a donc montré, d'une part l'excellent comportement du combustible Caramel en cas de rupture du gainage, d'autre part, la possibilité de détecter dans Osiris une rupture de gaine avant qu'il puisse produire une pollution significative des circuits du réacteur.

5 - UTILISATION DU COMBUSTIBLE "CARAMEL" EN TANT QUE COMBUSTIBLE DE PILE PISCINE - EXPERIENCE D'OSIRIS

A la suite du programme de qualification précédent, une expérience destinée à éprouver le combustible Caramel dans les conditions de service d'un réacteur de recherche à hautes performances a été entreprise. Pour cela, le combustible métallique à fort enrichissement du réacteur OSIRIS a été entièrement remplacé par un coeur Caramel à faible enrichissement (7 % en uranium 235).

L'objectif visé était un fonctionnement avec le nouveau combustible conservant les caractéristiques antérieures de marche d'Osiris. Avec une puissance de 70 Mw Osiris fournit des flux rapides de $2,5 \cdot 10^{14}$ n/cm²/sec ($E > 1$ MeV) et des flux thermiques de $3 \cdot 10^{14}$ n/cm²/sec. En réalité la conversion du coeur a entraîné quelques petites variations dans les conditions expérimentales du réacteur qui peuvent être résumées ainsi [2].

[1] Nuclear Technology Vol. 50 arg. 1980 p. 83-87

[2] International Meeting on Development, Fabrication and Application of Reduced Enrichment Fuels for Research and Test Reactors. Argonne Nov. 1980

Avantages :

Pour les expériences placées à l'intérieur du coeur

- amélioration du spectre neutronique (rapide/thermique)
- diminution significative de l'échauffement γ

Pour les expériences placées en périphérie

- augmentation du nombre des positions bénéficiant du haut niveau du flux thermique

Dans tous les cas, la durée du cycle a été allongée.

Inconvénients :

- légère diminution du niveau des flux rapides et thermiques
- diminution des performances thermohydrauliques

Le fonctionnement du réacteur n'a pas été modifié de façon significative malgré les handicaps cités ci-dessus et aucune expérience n'a été gênée par les nouvelles caractéristiques du coeur.

Historique du fonctionnement en coeur Caramel

Le réacteur Osiris du centre d'Etudes de Saclay a démarré avec un coeur Caramel en Janvier 1980 après une période d'essais et de mesures physiques effectuée en Décembre 1979.

Osiris a terminé normalement son onzième cycle le 21 Avril 1981.

Le réacteur fonctionne dans des conditions tout à fait satisfaisantes, sans pollution du circuit primaire.

Performances du combustible

Le tableau 1 ci-après fournit les taux de combustion maxima obtenus sur les différents types d'éléments combustibles à l'issue du cycle F3.

Enrichissement %	Type	Burn-up MJ/tU	% d'U5 initial consommé	Remarques
4.75	St	11621	26	Coeur de démarrage
5.62	St	21940	42.01	Coeur de démarrage
5.62	C	18370	34.7	
7	St	30402	44.96	Recharge à l'équilibre
7	C	25425	38.67	

Le tableau 2 fournit les principaux résultats d'exploitation du coeur Caramel.

Voir tableau ci-après.

N° de cycle	Charge initiale d'U5	Energie dégagée MJ	Durée du cycle JEPP
E ₀	20 733	1 542	22
E ₁	20 938	1 546	22.1
E ₂	21 586	1 813	25.9
E ₃	21 397.3	1 863.5	26.9
E ₄	21 163.86	1 670.2	23.9
E ₅	21 554.6	1 622	23.2
E ₆	21 817.4	1 650	23.6
E ₇	21 874.5	1 666	23.8
F ₁	21 481.7	1 732	24.7
F ₂	21 026.7	1 773.5	25.3
F ₃	21 407.8	1 937.6	27.7

Le coeur à l'équilibre est chargé uniquement avec des assemblages combustibles à 7 % (38 assemblages standard + 6 assemblages de contrôle). Le chargement initial contient donc environ 21,5 kg d'U5 et la consommation spécifique se situe autour de 1,1 g d'U5 par MWJ produit.

Suivi du combustible en pile

Afin de s'assurer du bon comportement du combustible en pile, un programme d'examen non destructifs systématiques a été entrepris. Il s'agit du contrôle des canaux d'eau, réalisé par un dispositif à jauges de contraintes et la comparaison avec les mesures effectuées après fabrication. Il concerne tous les assemblages déchargés après les 6 premiers cycles de fonctionnement et la moitié des assemblages déchargés après les 6 cycles suivants.

Ce programme actuellement en cours sera complété par des examens destructifs sur un des assemblages les plus irradiés, ayant atteint une combustion massique de 30000 MWd/tU.

L'ensemble des mesures ainsi réalisées, permet d'obtenir une évaluation globale, statistiquement représentative de l'évolution des caractéristiques et du comportement de l'élément Caramel Osiris sous irradiation.

Cette évaluation a permis de montrer le bien fondé des choix effectués, l'excellent comportement de l'élément dans les conditions imposées que confirme le bon fonctionnement du réacteur qui aura effectué 12 cycles à la date du 15 Juin 1981.

En conséquence du bon comportement des éléments combustibles, la combustion massique moyenne des faisceaux a été portée à 30000 MWd/tU.

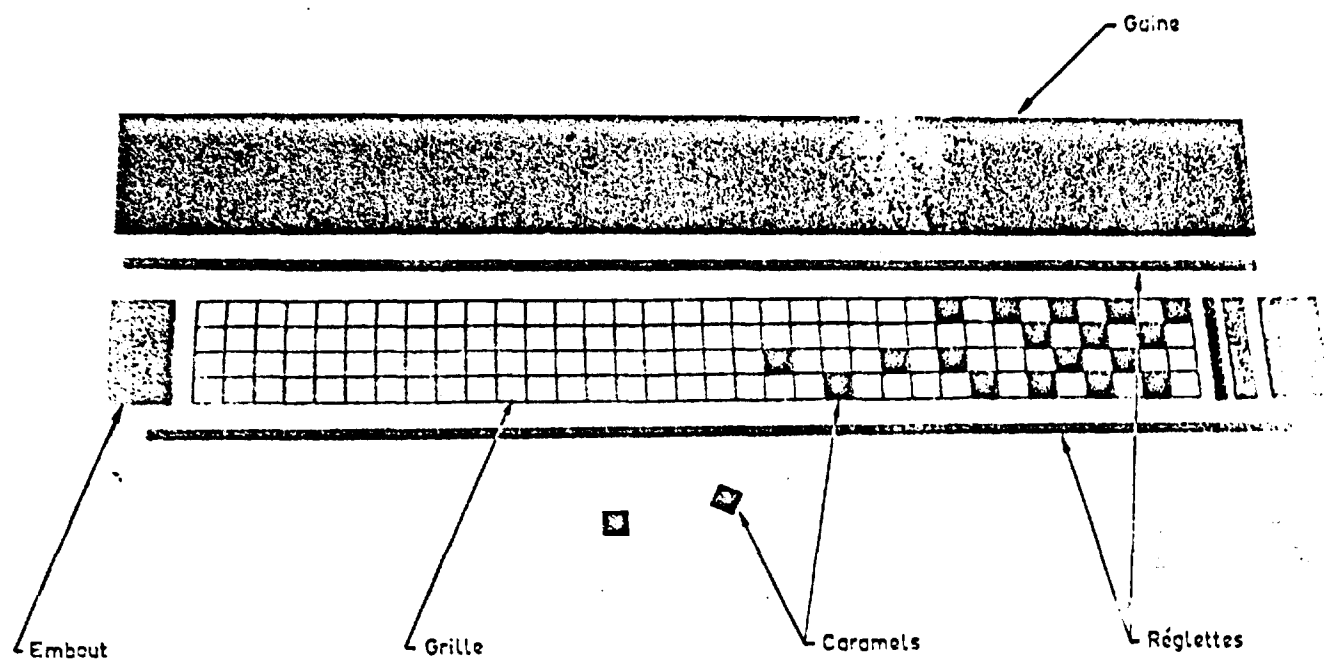


FIG. 1 - ÉLÉMENTS D'UNE PLAQUE CAMEL

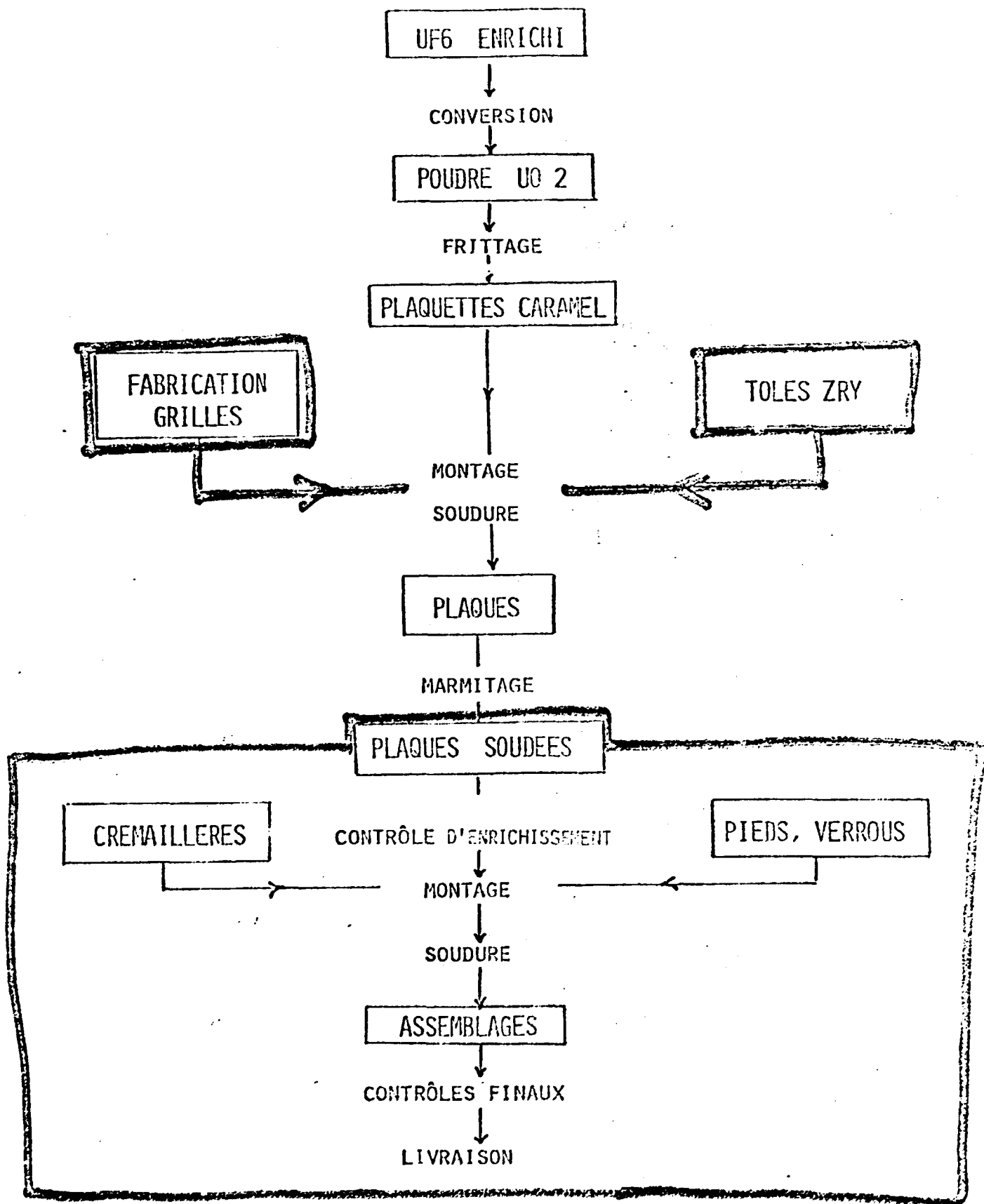


FIG. 2 - SCHEMA DE FABRICATION

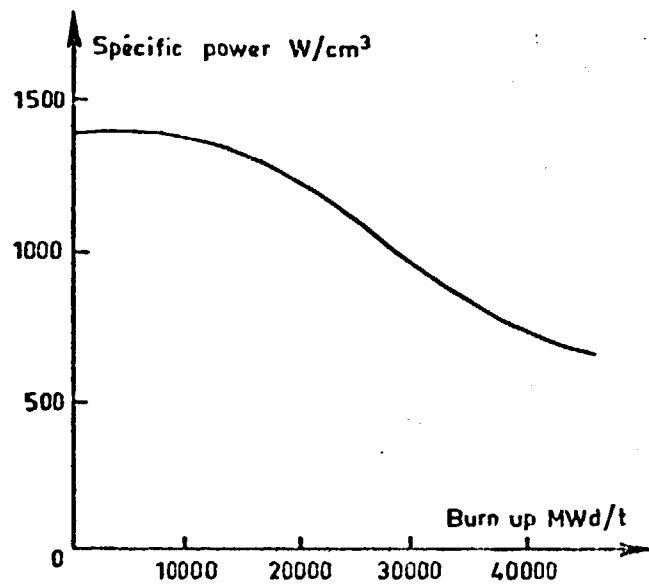


FIG. 3 - PUISSANCE SPECIFIQUE LIMITE EN FONCTION DE LA COMBUSTION MASSIQUE POUR UN CAMEL D'ÉPAISSEUR 4 mm.