

Examens après irradiation de combustibles PWR.
Tokyo, Japon, 9 - 13 novembre 1981.
CEA - CONF 6076.

**TECHNIQUES ET MOYENS DEVELOPPES PAR LE C.E.A.
EN CELLULE CHAUDE ET IN-SITU POUR EXAMENS APRES IRRADIATION
DE COMPOSANTS ET D'ASSEMBLAGES COMBUSTIBLES PWR**

J.C. VAN CRAEYNST, A. LESEUR, A. LHERMENIER, R. CYTERMANN

Les programmes de Recherche et de Développement, dont le C.E.A. a eu jusqu'à maintenant la charge, l'ont amené à maintenir un effort important, en particulier, sur les études de combustibles des différentes filières.

Dans le cadre de la filière PWR, les études relatives, au comportement sous irradiation des combustibles, à l'amélioration des performances, ou à son comportement en régime accidentel, ont nécessité le développement et la mise au point de techniques d'analyses et d'examens adaptées.

Ces techniques, développées pour l'étude des combustibles expérimentaux, sont largement applicables à des combustibles provenant des réacteurs de puissance.

Dans un combustible nucléaire, la première barrière prise en compte dans la sûreté est le gainage et l'étude de son comportement sous irradiation, et, en particulier, son interaction avec le combustible présente un intérêt considérable ; c'est la raison pour laquelle des techniques de contrôles non destructifs, telles que détection de défauts par courant de Foucault, ont été développées.

Enfin, l'examen par microanalyse X d'échantillon de combustible est une source d'informations importante permettant d'améliorer la compréhension des phénomènes physico-chimiques existant au sein du combustible.

Le Laboratoire d'Etude des Combustibles Irradiés, implanté sur le site de Saclay, avait, à son origine, été conçu pour étudier des combustibles, assemblages ou crayons, provenant de réacteurs expérimentaux, la dimension des cellules, comme les moyens de manutention, étaient donc adaptés à cet objectif.

Dans le cadre du développement du programme électronucléaire PWR/EDF, le CEA/SELECI s'est doté dès 1978 de moyens permettant l'examen de combustibles des réacteurs de puissance 900 MWe :

- Une cellule "Célimène", dont les dimensions et les moyens de manutention permettent de recevoir un assemblage complet.
- Un emballage spécial IL 42 développé par COGEMA/STS permet d'assurer le lien entre la Centrale et la cellule "Célimène".
- Enfin, une machine d'Examen de Combustibles, dont la mise en service rapide sur site réacteur permet de réaliser des examens visuels et de métrologies sur assemblages irradiés immédiatement après leur déchargement.

Les moyens et techniques d'examens présentés dans cet article correspondent à des exemples significatifs parmi l'ensemble des moyens existant au laboratoire.

RELATION ENTRE LA CENTRALE ET LE LABORATOIRE

L'emballage de transport "IL 42", d'une masse de 35 T, mis au point par COGEMA/STS et opérationnel depuis 1978, est constitué d'un étui central contenant l'assemblage.

Les systèmes d'obturation de l'étui et du château ont été spécialement étudiés pour permettre le chargement sous eau en centrale de l'assemblage par la partie supérieure de l'emballage, conformément aux procédures classiques appliquées en centrale, et le déchargement à sec en cellule par l'extrémité inférieure.

La protection biologique et thermique permet le transport d'un assemblage irradié à 30.000 MWD/Tu, après un refroidissement de 6 mois.

L'étui étanche a été conçu pour permettre le transport sous eau.

Cet emballage permet aussi le transport de structures type PWR utilisées pour le transfert et l'examen de grappes sources ou de crayons amovibles.

LA CELLULE CELIMENE

La cellule "Célimène", construite de 1962 à 1964, attenante au réacteur expérimental EL₃, et située à proximité immédiate du LECI (Laboratoire d'Etude des Combustibles Irradiés), a subi en 1975 d'importantes transformations afin d'assurer, dans le cadre du programme électronucléaire français, une jonction entre le laboratoire d'Examen (LECI) et les réacteurs de puissance EDF ou expérimentaux du type CAP.

Cette nouvelle affectation a pu être réalisée du fait des dimensions importantes de la cellule (longueur 6 m, largeur 3 m, hauteur 6 m).

Afin de répondre aux nouvelles conditions d'exploitation de la cellule, des modifications ont été apportées au plan de travail, afin de permettre l'accès aux puits de stockage et de manipulation.

Les moyens de manipulations d'origine sont :

- 4 manipulateurs, type maître esclave CRL E, répartis à raison de deux par poste de travail et de charge 10 kg.
- 2 manipulateurs lourds type OTER, capables de déplacer des charges de 300 kg (800 kg en vertical).

Afin d'assurer la manipulation des assemblages combustibles et l'extraction des crayons, la cellule a été dotée des équipements ci-dessous :

- 1) 1 élévateur situé dans le puits circulaire, à la verticale de l'obturateur à tiroir ; il permet de recevoir l'élément combustible et de régler sa hauteur par rapport au plan de travail. C'est là que l'élément combustible est démantelé. La force de cet élévateur est de 15 kN et sa course est de 4 mètres. Un système de soufflage injecte à sa base de l'air refroidi à + 5° pour un

débit maximum de $2350 \text{ m}^3/\text{h}$ et une pression de 165 mm de colonne d'eau.

- 2) 1 potence de 10 kN à travers la paroi nord de la cellule ; elle permet de sortir l'assemblage combustible du puits de démantèlement afin de réaliser avant découpage des examens non destructifs d'ensemble.
- 3) 1 potence de 2 kN fixée à la paroi nord de la cellule qui permet d'extraire les crayons de l'élément combustible et de les introduire dans le puits de stockage. Une pince hydraulique spéciale permet de saisir les crayons par leur extrémités supérieure.

Les équipements internes spéciaux comprennent notamment :

- une scie alternative spécialement adaptée pour découper des pièces de grand diamètre (possibilité $\varnothing = 250 \text{ mm}$).

Elle est télécommandée du poste de travail par un système hydraulique.

- une tronçonneuse à fraise scie qui permet de découper le haut des éléments combustibles PWR ou BWR et d'accéder ainsi à la partie supérieure des crayons combustibles pour les extraire.
- un dispositif d'extraction des crayons équipé d'un capteur de force.
- un stockage des crayons PWR installé dans le puits de 1 m x 2 m et 4,90 m de profondeur.

Il peut contenir 320 crayons répartis dans 20 paniers de 16 crayons qui peuvent être refroidis par un courant d'air pulsé ascendant, éventuellement réfrigéré à + 5°.

- un dispositif permettant de procéder à des examens non destructifs sur les assemblages entiers ou sur les squelettes (observation

optique, photographie, métrologie).

Ce dispositif est constitué d'un support d'assemblage, d'une poutre verticale et d'un chariot mobile porte outils. Sur le chariot, mobile suivant Z, sont adaptés les outils destinés aux examens et métrologie associés aux déplacements d'une table XY, l'ensemble étant télécommandé à partir de la zone de travail avant de la cellule.

L'examen visuel des 4 faces de l'assemblage est obtenu grâce au déplacement des miroirs renvoyant l'image de l'objet sur une caméra TV implantée hors cellule.

Les mesures verticales sont obtenues par visées optiques en comparant la longueur des objets à celle d'une règle étalon de référence solidaire du banc.

Dans un plan horizontal suivant un Z donné, les mesures sont obtenues en tenant compte du déplacement de la mire de visée solidaire du mécanisme dont le déplacement est fonction d'un nombre d'impulsions données au système.

L'espacement des crayons de l'assemblage à différents niveaux est obtenu par un dispositif laser.

Depuis 1977, on a pu ainsi réaliser, dans le cadre de la filière PWR :

- des programmes de R et D sur crayons amovibles provenant de réacteurs de puissance
- des travaux sur assemblages destinés aux programmes de R et D sur le retraitement.

L'examen d'assemblage PWR 1300 MWe sera possible dans le futur, lorsque la cellule aura été modifiée en conséquence.

Une hotte (IL 41) est utilisée pour transporter verticalement le crayon, de la cellule de démantèlement d'assemblage "Célimène", vers la cellule de métrologie crayon située en ligne K du LECI.

Grâce à ce procédé de manutention, il est possible d'appliquer à un crayon de 4 m de long l'ensemble des techniques d'examens et d'analyses mises en oeuvre dans le laboratoire pour des combustibles expérimentaux et qui sont :

- Examen visuel par TV ou periscope.
- Métrologie sur plusieurs génératrices.
- Spectrométrie γ .
- Perçage de gaine, prélèvement de gaz et analyse.
- Usinage, tronçonnage.
- Prélèvement d'échantillons.
- Macrographie, micrographie, céramographie.

et, en particulier :

- Expertise de la gaine par courant de Foucault
- Analyse qualitative et quantitative par microsonde.

DETECTION DE DEFAUTS PAR COURANT DE FOUCAULT

Le contrôle non destructif par courant de Foucault est utilisé depuis plusieurs années pour caractériser l'état de santé des gaines des éléments combustibles après irradiation ; enfin, nous avons récemment adapté à l'analyse de surface des crayons PWR, un appareil destiné à la mesure de l'épaisseur de couche d'oxyde.

Le générateur utilisé est un CSF 67 de C.G.R. Il permet un choix de fréquences allant de 200 à 1 MHz. Les examens sont réalisés à une fréquence de 250 KHz. Un dispositif photographique permet de conserver l'image obtenue sur l'oscilloscope et un enregistreur nous donne la valeur des composantes X et Y du signal permettant ensuite d'obtenir la cote du défaut.

La technique développée met en oeuvre une bobine encerclante qui est déplacée le long du crayon par un dispositif mécanique.

Dans le cadre des études après irradiation des éléments combustibles PWR ayant fonctionné en régime "stable" ou "transitoire", 120 crayons ont été contrôlés par courant de Foucault. Les crayons qui avaient subi des rampes de puissance présentaient de nombreux défauts. Des essais de corrélation entre "signal courant de Foucault" et défaut métallurgique ont été réalisés à l'aide d'examen métallographique et d'examens effectués à "froid" sur des tubes comportant des défauts caractérisés ; ils permettent de préciser les points suivants :

- Une fissure débouchante est clairement identifiée en déphasage et en amplitude. Il est donc possible, à partir du seul examen par courant de Foucault, de préciser si un crayon présente ou non ce type de défaut.

- Les autres défauts correspondent souvent à des signaux complexes qu'il est difficile de relier à un défaut métallurgique précis (fissures multiples, fissures et hydrures associés, hydrures ...).
- Les défauts internes de faible profondeur ($\sim 0,1$ mm, soit environ 17 à 20 % de l'épaisseur de la gaine peuvent être détectés.
- Les défauts géométriques de la gaine (effet "bambou" ou "ridge") sont aussi détectés par cette technique.

MESURE D'ÉPAISSEUR DE COUCHE D'OXYDE

Un permascopie Fisher et sa sonde ont été modifiés de façon à permettre leur utilisation en cellule blindée ou éventuellement sous eau. Le système guidant la sonde, maintenue perpendiculairement à une génératrice du crayon se déplace le long du crayon par l'intermédiaire du mécanisme de métrologie, les informations sont enregistrées sur table traçante.

On obtient ainsi le profil de la couche d'oxyde existant sur la gaine pour chaque génératrice examinée.

Les premières mesures réalisées sont en très bon accord avec les contrôles métallographiques effectués sur diverses coupes d'échantillons.

Cette technique nous a donné de précieux résultats sur les études du comportement des crayons PWR en stockage longue durée, par exemple.

ANALYSE PAR MICROSONDE DE CASTAING

De nombreux phénomènes intervenant au cours du fonctionnement des réacteurs de type PWR nécessitent l'analyse de très petits volumes de matière radioactive pour laquelle la microsonde blindée s'est révélée un outil de choix. On peut citer notamment :

- la formation et l'accumulation locale de produits de fission, dont certains peuvent avoir une action corrosive vis-à-vis de la gaine
- la répartition du plutonium formé au cours de l'irradiation
- les ruptures accidentelles
- la précipitation de produits de fission métalliques, origine des résidus de dissolution apparaissant lors du retraitement des combustibles irradiés
- l'analyse de carbone

L'activité radioactive des matériaux examinés impose d'une part l'emploi de techniques particulières de préparation en cellule blindée (imprégnation métallique, polissage automatique, décontamination, décapage ionique) et d'autre part l'utilisation d'une microsonde blindée.

La microsonde blindée a été conçue à partir de l'appareil standard MS 56, de manière à assurer la protection biologique de l'expérimentateur et à réduire le bruit de fond dû aux rayonnements β et γ de l'échantillon à un niveau minimal. Il permet le transfert de l'échantillon, sans rupture de protection, de l'enceinte de préparation à la microsonde.

Le mouvement objet de la microsonde est intégré à ce château de transfert. Cet ensemble de protections permet d'intervenir en tout point de l'appareil sans retirer l'échantillon.

Enfin, de manière à minimiser le bruit de fond radioactif et à obtenir une limite de détection aussi basse que possible, les compteurs sont protégés du rayonnement de l'échantillon par des écrans en plomb.

Les différences essentielles avec l'appareil standard sont les suivantes :

- introduction de l'échantillon
- mouvement objet
- chemin optique du microscope d'observation
- blindage du corps de sonde
- limitation du déplacement des cristaux analyseurs

La protection de l'opérateur a été déterminée de manière à pouvoir analyser, sans enfreindre les normes d'irradiation du personnel (5 rems/an, intensité moyenne d'irradiation 2,5 mR/h), des échantillons ayant une activité maximale de 4 Ci de ^{137}Cs (photons γ de 0,66 MeV).

Cette protection est réalisée grâce :

- au blindage du corps de sonde
- au remplacement d'éléments initiaux en alliage d'aluminium par des pièces identiques en plomb ou en denal (alliage fritté à base de tungstène).
- à la réalisation d'un château de transfert de l'échantillon de l'enceinte de préparation vers la microsonde.

Différentes études ont été réalisées à l'aide de la microsonde blindée, et en particulier :

Répartition du Xe et du Cs dans une section d'élément combustible PWR

Les points suivants sont mis en évidence :

- le xénon est occlus dans la matrice d' UO_2 sur une couronne périphérique d'environ 1 mm d'épaisseur correspondant à des températures de fonctionnement inférieures à 1150°C.
- une accumulation importante du césium en périphérie du combustible.
- un enrichissement en plutonium en périphérie de l' UO_2 .
- une relation étroite entre la structure métallographique et les phénomènes de dégagement et de migration des produits de fission Xe et Cs.

Analyse des zones de contact oxyde-gaine dans une section d'élément combustible irradié à fort taux de combustion

Dans le jeu oxyde gaine, un certain nombre de plages sont comblées par une phase grise très importante qui pénètre dans les joints de grains de l'oxyde. Cette couche de réaction observée en périphérie de l'oxyde est composée de deux sous-couches dont l'analyse à la microsonde a permis de déterminer la nature.

- la première couche, située contre la gaine, s'étend sur 30 à 40 μm de profondeur ; elle est la plus riche en césium et contient les éléments U-Zr-Cs-O dont la répartition est hétérogène. La composition pondérale moyenne de cette zone d'interdiffusion est U 19,5 %, Zr 43 %, Cs 18 %, O 11,5 %.
- la deuxième couche que l'on retrouve également sous forme d'ilots dans la couche précédente et dans les joints de grains de l'oxyde,

contient les éléments U-Cs-O et est plus riche en uranium que la première couche. Elle s'étend au maximum sur 100 μm de profondeur où la répartition des éléments U et Cs est homogène. La composition pondérale de cette phase est la suivante : U 83,8 %, Cs 0,7 %, O 11,3 %.

- On observe également localement des nodules de U-Cs-Te contenant environ 8 % de tellure.

- Une couche de zircone est toujours observée sur la face interne de zircaloy en présence de ces phases.

APPAREIL D'EXAMEN SUR SITE REACTEUR

Enfin, nous avons tout dernièrement mis au point un Module d'Examens de Combustibles (MEC), charpente en acier inoxydable de 3 m x 3 m de base et de 7 m de haut et comportant une poutre de référence supportant un chariot mobile équipé des outils d'examen et de métrologie.

Cet ensemble de 5 T a la particularité d'être transportable en conteneur étanche et de pouvoir être mis en service en moins de 24 heures dans la fosse de chargement des emballages de transport des combustibles usés attenante à la piscine de désactivation.

L'examen visuel de 6 faces de l'assemblage est obtenu à l'aide d'une caméra de TV immergée et de miroirs métalliques spéciaux.

La métrologie, obtenue à l'aide du système YV, est complétée par l'utilisation de capteurs US qui permettent d'obtenir la position en X et en Y des diverses pièces de structures de l'assemblage, ainsi que celle des axes des crayons.

Grâce à la haute technicité des agents du Laboratoire et à cet ensemble de moyens que nous venons de décrire brièvement, nous sommes en mesure de couvrir l'ensemble du domaine des études :

- Examens et contrôles - statistiques sur assemblages irradiés en site réacteur, à l'aide du Module d'Examen de Combustible (MEC)
- Examens détaillés, expertise, usinage sur assemblages, en cellule "Célimène"
- Examens détaillés, analyse, expertise sur crayons PWR 4 m dans les lignes de cellules du LECI.