

COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

INSTITUT DE PROTECTION ET DE SURETE NUCLEAIRE

DEPARTEMENT DE SURETE NUCLEAIRE



RAPPORT DSN N° 578 FR 8301550

LE COMPORTEMENT A LA FUSION EN REGIME TRANSITOIRE
DE COMBUSTIBLES NUCLEAIRES

L. ROCHE*, F. SCHMITZ*

8. European conference on thermophysical properties
Baden-Baden, Germany FR 27 Sep - 1 Oct 1982
CEA-CONF--6623

*DSN/CAD

RESUME :

L'observation de micrographies du combustible après essai CABRI nous conduit à postuler un mode de fusion spécifique pour l'échauffement rapide par chauffage nucléaire. A l'atteinte du seuil de la fusion les liaisons caractéristiques de l'état solide sont rompues statistiquement dans un domaine macroscopique et le temps de maintien au niveau critique d'enthalpie entre solide et liquide est trop court pour conduire à une séparation des phases. Une durée de vie significative (= 1 seconde) de cet état intermédiaire aurait des conséquences sur la variation des propriétés physiques liée au changement d'état : viscosité, volume spécifique, relâchement des gaz de fission du combustible irradié.

ABSTRACT :

The observation of micrographic documents from fuel after a CABRI test leads to postulate a specific mode of transient fuel melting during a rapid nuclear power excursion. When reaching the melt threshold, the bands which are characteristic for the solid state are broken statistically over a macroscopic region. The time of maintaining the fuel at the critical enthalpy level between solid and liquid is too short to lead to a phase separation. A significant life-time (~ 1 seconde) of this intermediate "unsolide" state would have consequences on the variation of physical properties linked to the phase transition solid/liquid : viscosity, specific volume and (for the irradiated fuel) fission gas release.

La détermination expérimentale de l'étendue de la fusion de l'oxyde se produisant lors d'un transitoire sévère de puissance présente une double importance :

- La limite de fusion est le seul repère thermométrique utilisable pour s'assurer de l'exactitude de l'état thermique de l'oxyde calculé par les codes.
- La quantité d'oxyde fondu ainsi que sa répartition axi-radiale dans l'aiguille combustible déterminent le déroulement ultérieur de la séquence accidentelle.

Or, si nous disposons d'une vaste expérience concernant la localisation expérimentale de l'isotherme de fusion, (HORN G.R., 1966), consécutive à une irradiation en régime permanent ou en transitoire lent ; par contre nos connaissances dans le domaine de fusion transitoire sont pratiquement nulles.

En outre, pour l'élaboration des modèles de calcul thermique du combustible, en l'absence de connaissance précise sur l'échauffement et la fusion en transitoire rapide, nous utilisons les relations établies pour les régimes transitoires lents.

Dans ces conditions, la différence essentielle entre fusion en régime quasi permanent et fusion en régime transitoire rapide est représentée sur la figure 1.

- En régime permanent ou en transitoire lent, c'est-à-dire dans un régime où les cinétiques d'injection d'énergie et d'écoulement de la chaleur par conduction thermique sont voisines, le phénomène de fusion se traduit par la progression d'un front correspondant à une discontinuité locale de l'enthalpie.

- En régime transitoire sévère, voisin d'un échauffement adiabatique, et compte tenu de la génération in situ de l'énergie, une fraction importante de l'oxyde peut se trouver dans un état enthalpique intermédiaire entre le solide monophasé à la température de fusion et le liquide monophasé à cette même température.

Dans cette zone d'enthalpie intermédiaire, l'application des relations de la thermodynamique (loi de Variance des phases...) implique que pour un oxyde pur (UO_2) la température reste égale à la température de fusion. Par conséquent l'utilisation de l'équation de conduction de la chaleur (équation de Fourier) se traduit par l'absence d'échange de chaleur dans cette zone.

La représentation couramment admise pour cette zone double-phase monovariante est un mélange intime de liquide et d'ilots solides (Figure 2). Il en découle que 2 repères enthalpiques peuvent être utilisés pour la confrontation calcul/expérience :

- La limite de début de fusion (solidus), c'est-à-dire la limite entre le solide et la zone double-phase.
- La limite de fin de fusion (liquidus) ou limite entre le domaine biphasé et le liquide monophase.

Parmi les expériences du programme CABRI (MELIS J.C. et al, 1982 - DADILLON J et al, 1982), réalisées à ce jour, deux d'entre elles présentent un intérêt particulier pour l'étude de la fusion transitoire :

- L'essai A1_R : transitoire de puissance sur aiguille combustible UO_2 vierge à partir d'un régime permanent représentatif du fonctionnement nominal d'un réacteur rapide. L'injection d'énergie (0,6 Kj/g au pic axial de flux en 250 ms) conduit à un état enthalpique maximum de l'oxyde caractérisé par une importante zone double-phase (Figure 3).

...

- L'essai A2 correspondant à une injection d'énergie de 1,06 Kj/g en 250 ms à partir d'un régime permanent voisin de celui de l'essai A1 R. Dans cet essai l'état enthalpique maximum se traduit par une zone liquide monophasé s'étendant presque jusqu'à la surface de la pastille combustible (Figure 3).

En conséquence sur les examens céramographiques de l'aiguille A1 R on devrait voir apparaître 2 limites (le solidus et le liquidus) alors que pour l'aiguille A2 une seule limite devrait se manifester, celle séparant le liquide monophasé de la couronne externe d'oxyde resté solide.

Du fait de l'existence potentielle d'une zone double-phase importante dans l'aiguille A1 R, un vaste programme d'investigation faisant intervenir plusieurs laboratoires "chauds" a été entrepris.

En dépit de ces efforts, la situation présente n'est pas claire en ce sens qu'il y a de profondes divergences d'une part entre les conclusions des différents laboratoires et d'autre part entre ces résultats expérimentaux et les résultats provenant de différents codes de calcul dont on doit souligner le parfait accord (FRIZONNET J.M. - MELIS J.C. 1980).

Cette situation nous a conduit à revoir notre conception du phénomène de fusion consécutif à une irradiation transitoire sévère du type de celles réalisées dans les expériences CABRI qui se caractérisent par :

- une injection rapide d'énergie se traduisant par un échauffement quasi-adiabatique de l'oxyde.
- une génération fine et homogène de l'énergie dans la masse liée à la nature du chauffage nucléaire (1 Joule correspondant à $3 \cdot 10^{10}$ fissions et chaque fission libère son énergie sur une distance de $\sim 10 \mu$ correspondant au ralentissement des fragments de fission).

...

En conséquence, si l'on considère deux éléments de volume dv adjacents situés sur un même rayon, ils présentent le même niveau enthalpique aussi bien lors du régime permanent initial qu'au cours de l'échauffement transitoire jusqu'à la température de fusion.

Lorsqu'on atteint la température de fusion, la représentation du processus de fusion correspondant à l'apparition de domaines liquides entourant des îlots solides se traduit par le fait qu'un des 2 éléments de volume considérés précédemment reste solide à la température de fusion, alors que l'autre devient liquide à cette même température. Il s'en suit qu'entre ces 2 éléments de volume apparaît brutalement un déséquilibre enthalpique correspondant à l'enthalpie de fusion de l'oxyde (279 J/g) ce qui est difficilement concevable du fait de la génération homogène et fine de l'énergie dans la masse. ($279 \text{ J/g} = 8,7 \cdot 10^{10} \text{ fissions/g}$).

Un processus de fusion respectant l'homogénéité de la répartition d'énergie vient alors à l'esprit ; il fait appel à la notion de désordre local et d'ordre à longue distance.

Lorsqu'on atteint localement la température de fusion de l'oxyde, l'énergie générée dans la masse ne se traduit plus par l'augmentation de la température mais par la création de défauts localement uniformément répartis. Ces défauts correspondent à la rupture des liaisons caractéristiques de l'état solide.

Tant que le nombre de défauts ainsi créés reste faible, du fait de leur distribution homogène, on ne perturbe pas l'ordre à grande distance et l'oxyde conserve globalement les caractéristiques du solide (création de défauts à l'intérieur du squelette solide).

Il est clair que le nombre de défauts augmentant avec l'injection d'énergie, il arrive un moment où la notion d'ordre

...

à longue distance commence à disparaître (écroulement progressif du squelette solide). L'oxyde se trouve alors dans un état qui, bien que non totalement liquide, doit présenter un comportement assez voisin de celui-ci.

Par conséquent, le processus de fusion transitoire ne ferait pas apparaître de domaine biphasé mais se traduirait par le passage de l'état solide à l'état liquide à travers une phase intermédiaire (Figure 4).

Pour tenter de valider cette hypothèse, nous avons effectué une comparaison entre les résultats de calcul et les examens céramographiques effectués sur les 2 aiguilles CABRI A1 R et A2.

Il faut noter que l'approche du processus de fusion ne peut se faire qu'à partir des observations faites sur l'oxyde après refroidissement. Le processus de solidification intervient donc comme un phénomène perturbateur. En particulier, on peut se poser la question de savoir si cette phase intermédiaire entre l'état solide et l'état liquide est stable pendant un temps significatif ou bien si les désordres à courte distance ont tendance à se regrouper pour donner naissance à un domaine biphasé dans la région où l'enthalpie maximale atteinte se situe entre celle du solide à la température de fusion (H_S^{TF}) et celle du liquide à cette même température (H_L^{TF}).

La comparaison des résultats de calcul concernant les essais A1 R et A2 (code KAROLH) aux examens céramographiques effectués sur ces 2 aiguilles combustibles nous conduit aux conclusions suivantes (Figures 5 et 6) ; la fraction enthalpique de fusion étant définie comme le rapport

$$\frac{H_{\max} - H_S^{TF}}{H_L^{TF} - H_S^{TF}} \times 100$$

- La disparition de la structure initiale de l'oxyde correspond à une fraction enthalpique de fusion se situant entre 0 et 10 %

- Entre 10 % et 40 % de fraction enthalpique de fusion, l'oxyde présente une structure à grains équiaxes.
- Entre 40 % et 80 %, l'oxyde présente une structure à grains allongés radialement et à porosités sphériques.
- Entre 80 % et 100 % : structure à grains allongés radialement sans porosités.
- Lorsque l'oxyde liquide a été chauffé au-dessus de sa température de fusion, on voit apparaître de gros pores allongés radialement.

Il apparaît que dans l'hypothèse d'un processus de fusion transitoire faisant appel à une phase intermédiaire entre le solide et le liquide, la disparition de l'ordre à grande distance dans cette nouvelle phase correspondrait à une fraction enthalpique de fusion de 40 %.

CONCLUSION ET APPLICATION

Le chauffage nucléaire rapide conduit, lorsqu'on atteint localement le seuil de la fusion, à la rupture des liaisons caractéristiques de l'état solide. Cette situation est atteinte sur un domaine macroscopique de façon homogène. Des transferts locaux d'enthalpie considérables seraient nécessaires pour provoquer une séparation des phases solides et liquides dans le temps très court de maintien au niveau enthalpique de

$$H_{Tf-\epsilon} < H < H_{Tf} + \epsilon$$

Nous formulons donc l'hypothèse qu'il existe un seuil de vitesse d'échauffement au-delà duquel la séparation des phases liquide /solide ne se produit pas dans le domaine spatial

...

ou le niveau enthalpique se situe entre l'état solide et l'état liquide. Pour le combustible nucléaire, en situation accidentelle, une durée de vie significative de cet état "insolide" (ni solide, ni liquide) pourrait avoir des conséquences sur la phénoménologie accidentelle.

L'analyse des micrographies du combustible CABRI nous conduit à postuler un changement des propriétés du combustible au niveau d'enthalpie correspondant à une fraction fondue d' environ 40 %

La variation des propriétés fondamentales liée au changement d'état pourrait donc se produire avant d'atteindre l'état de fusion complète. Les propriétés concernées seraient : la viscosité, le changement de volume $\Delta V/V$ et, pour le combustible irradié, le relâchement de gaz de fission.

Enfin, puisque pour des rampes d'échauffement plus lentes, les phénomènes doivent se rapprocher du comportement normal en état d'équilibre, certains effets de vitesse de rampe, bien connus dans les expériences transitoires, pourraient ici trouver un élément d'explication.

REMERCIEMENTS

Les documents photo présentés dans ce papier sont des résultats des examens post-test-CABRI faits au Laboratoire LECA à CADARACHE par M. B. GAYET.

Les auteurs remercient MM. BARÉSCUT, CRANGA et FAUGERE pour les discussions fructueuses et stimulantes.

REFERENCES

HORN G.R., 1966

Atlas of Irradiated fuel structures - BNWL - 225

MELIS J.C. et al, 1982

Analyse des Expériences en Pile CABRI

Conférence Int. sur la Sûreté des Réacteurs Rapides
LYON.

DADILLON J. et al, 1982

Le Projet CABRI - Etat d'Avancement

Conf. Int. sur la Sûreté des Réacteurs Rapides - LYON.

FRIZONNET J.M. - MELIS J.C., 1980

Synthesis of A1, A1 R and A2 Real Case Calculations
CABRI Note C 288/80

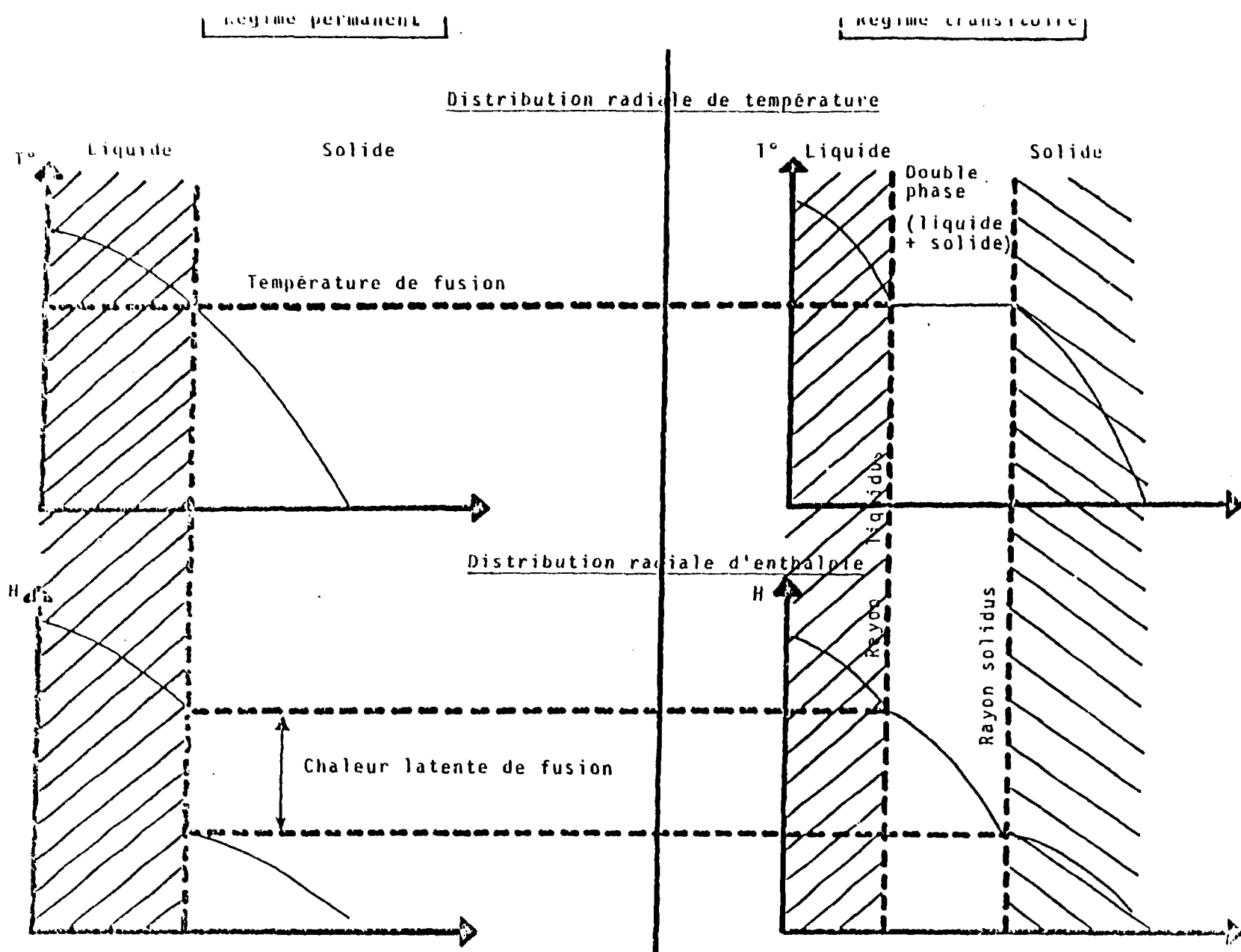


FIG.1 : fusion en régime permanent et fusion en régime transitoire par chauffage neutronique

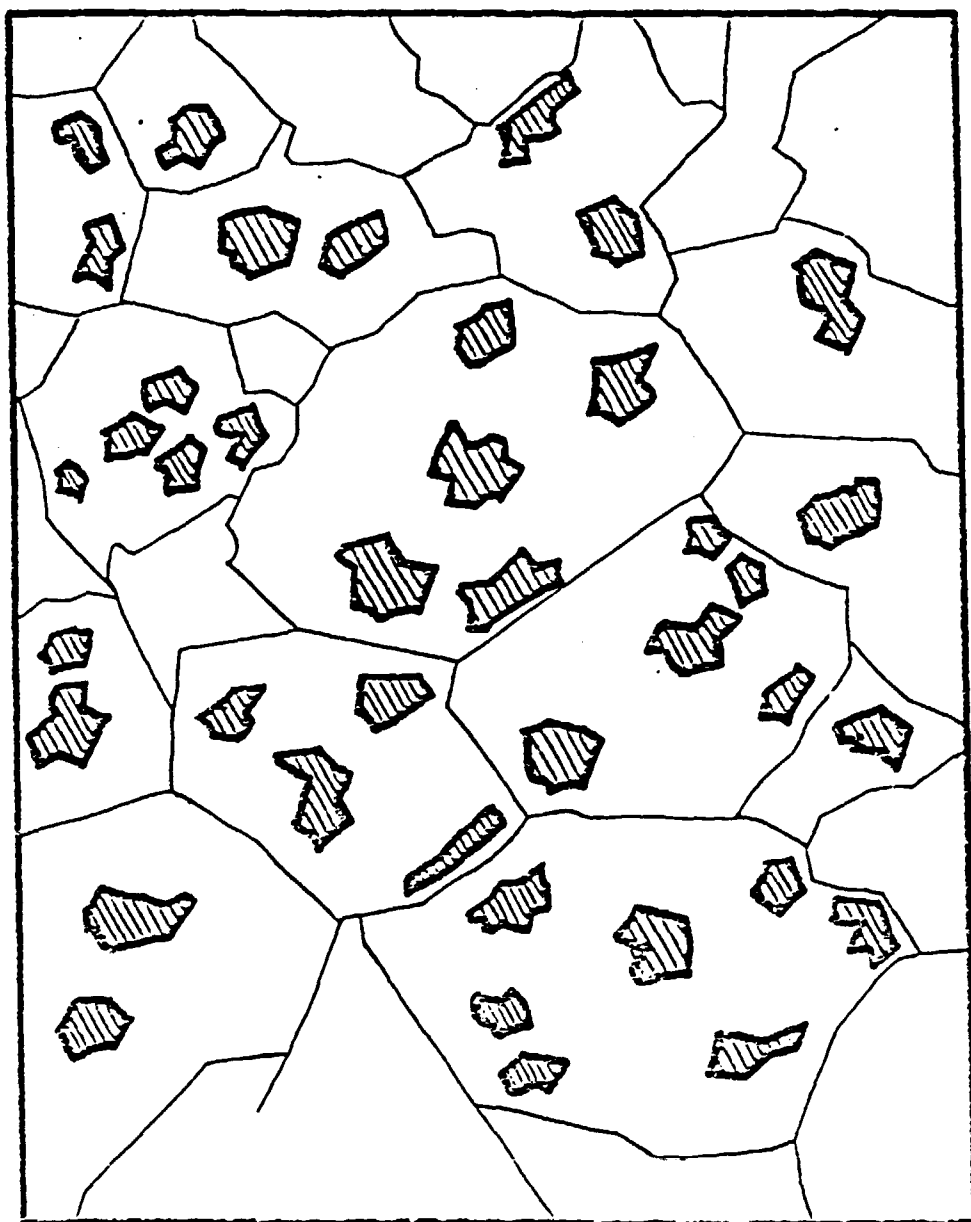


FIG. 2 : Représentation de la zone double phase
îlots solides entourés de liquide

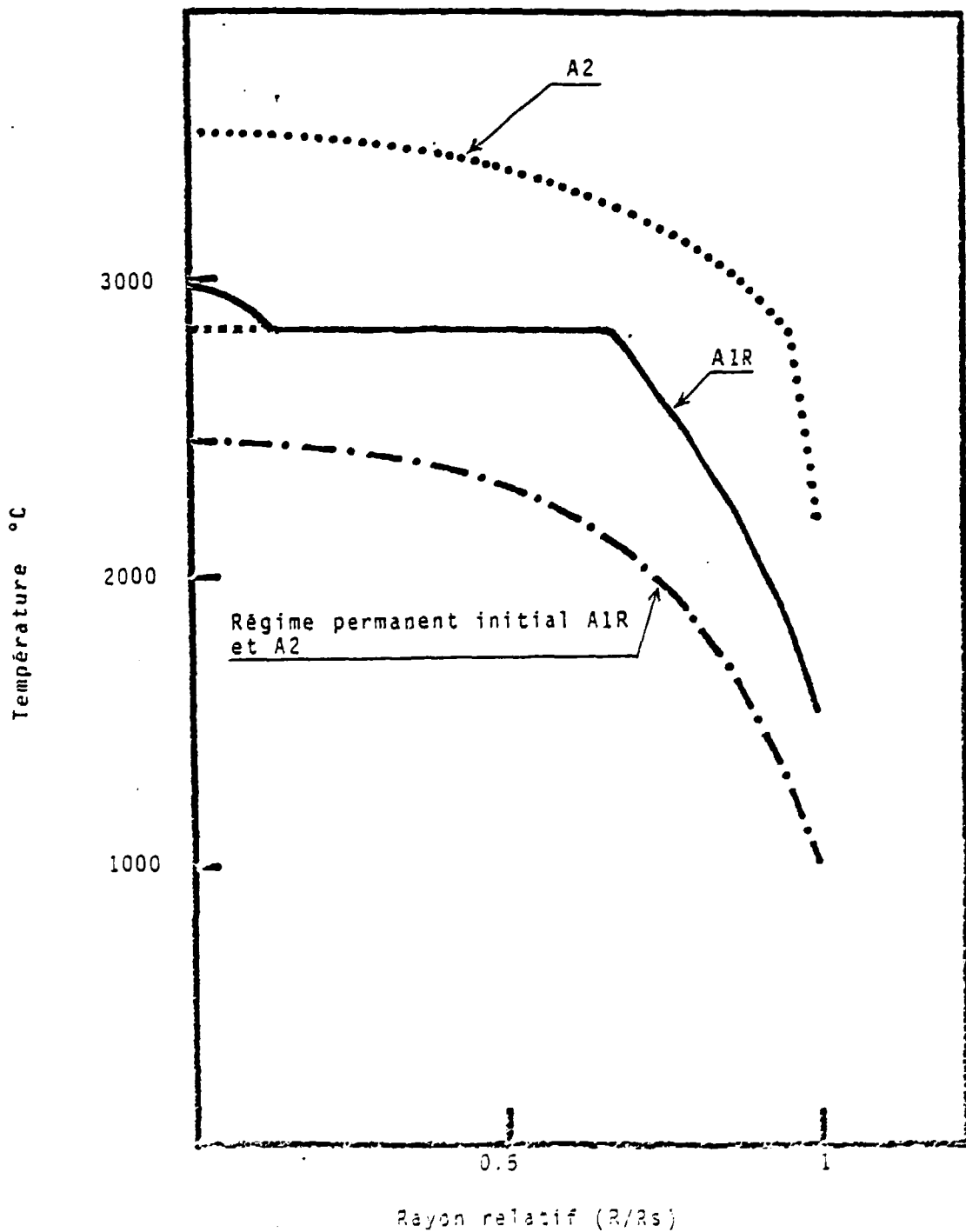


FIG. 3 : Distribution radiale des températures maximales calculées
Essais CABRI A1R et A2

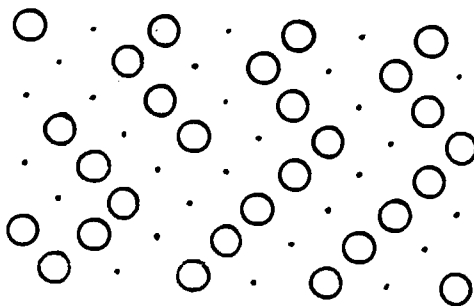
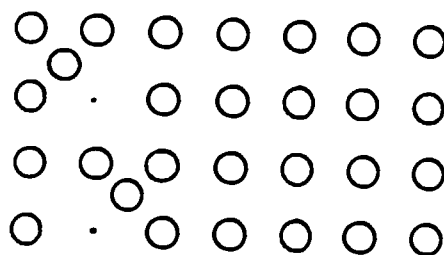
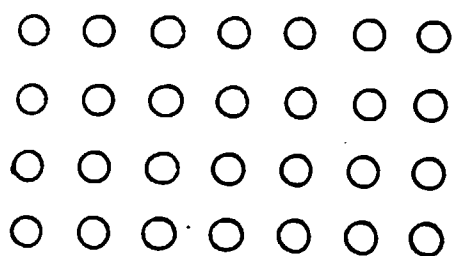
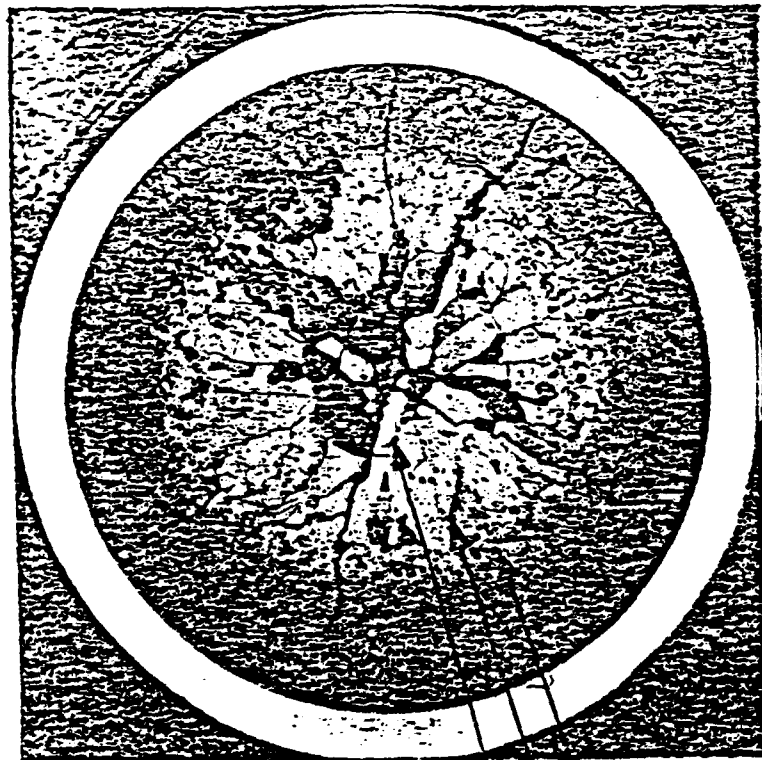


FIG. 4 : Transition solide/liquide en régime transitoire avec génération interne d'énergie.
 a) : Solide - b) début de fusion : désordre à courte distance et conservation de l'ordre à grande distance
 c) disparition de l'ordre à grande distance



- Valeurs expérimentales
- Solidus calculé
- Fraction fondue 40 % calculée
- - - Fraction fondue 70 % calculée
- · - · Fraction fondue 90 % calculée

Céramographie cote axiale
357 mm

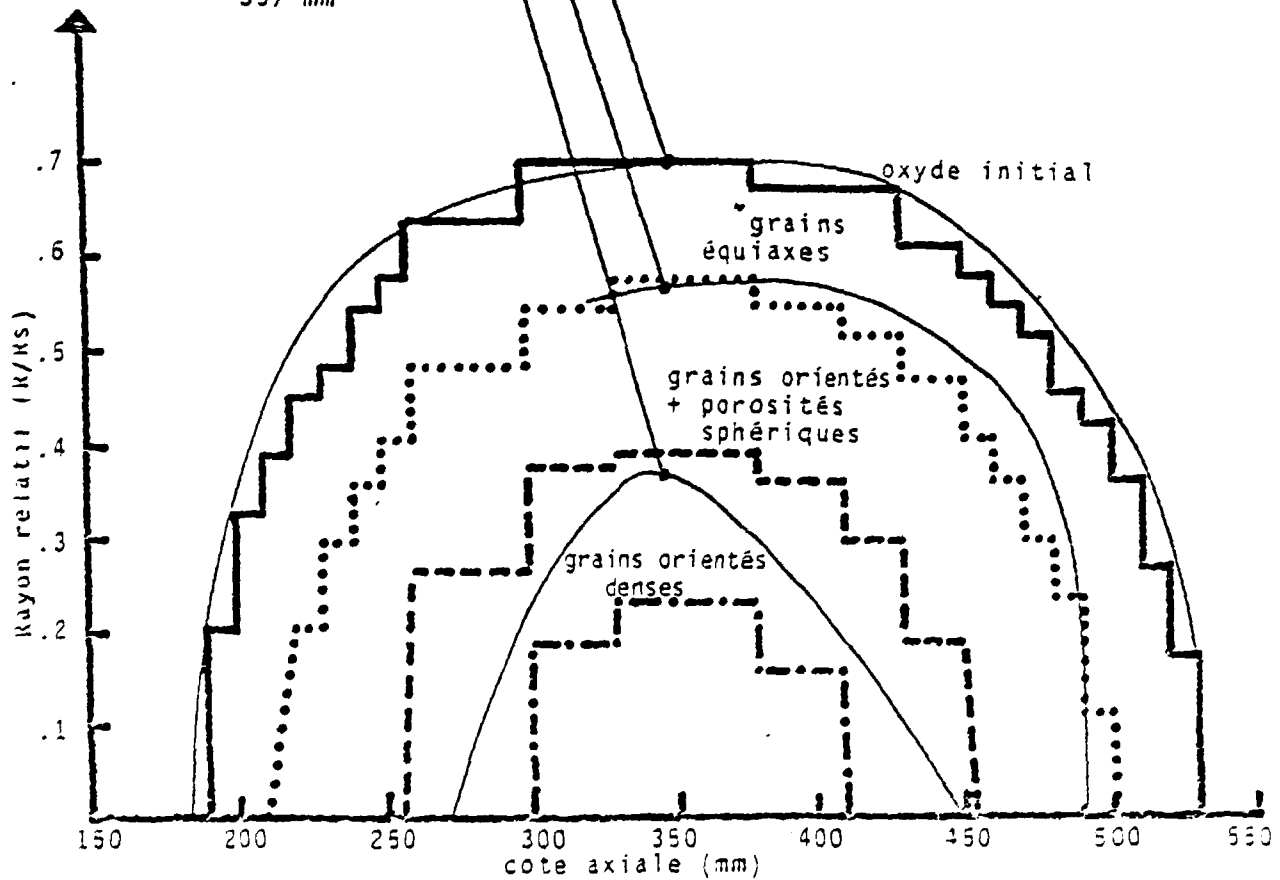
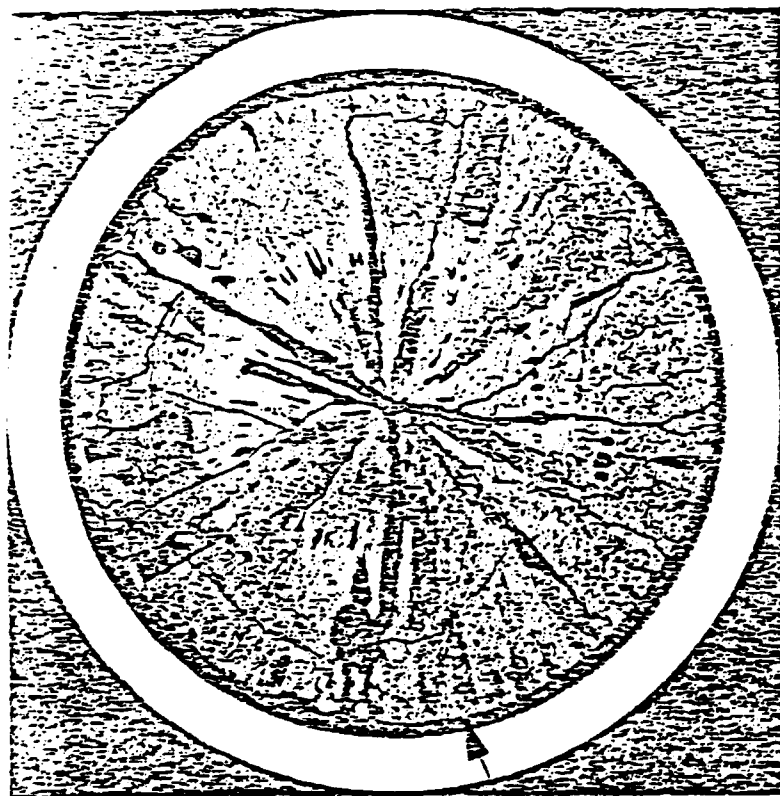


FIG. 5 : Comparaison des résultats de calcul aux examens céramographiques
Essais CABRI AIR



Céramographie cote 378 mm

- Valeurs expérimentales
- ① Oxyde initial
- ② Limite interne des grains équiaxes
- ③ Limite interne des porosités sphériques
- ④ Zone à grains orientés et à pores allongés
- Solidus calculé
- Fraction fondue 40 % calculée
- .-.- Liquidus calculé

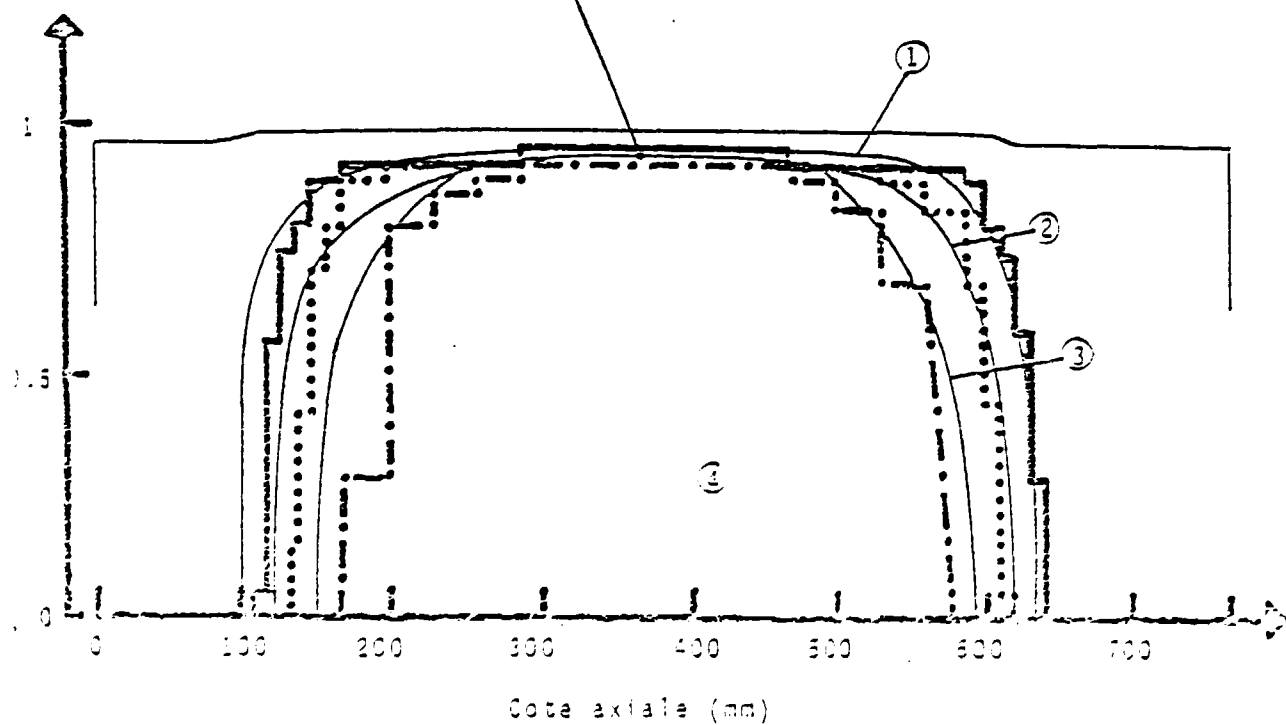


FIG. 6 : Comparaison des résultats de calcul aux examens céramographiques

