

FR 90/772

SUIVI EN PILE DU RELACHEMENT
GAZEUX D'AIGUILLES CARBURE A JOINT SODIUM IRRADIEES DANS OSIRIS

M. COLIN, J.L. FAUGERE, J. ROUAULT

Centre d'Etudes Nucléaires de FONTENAY-aux-ROSES, CEA, DECPu, SPuI

BP n° 6 - 92260 FONTENAY-aux-ROSES

1 - INTRODUCTION

Trois aiguilles carbure à joint sodium ont été irradiées dans le réacteur thermique français OSIRIS à une puissance linéaire nominale de 900W/cm, à des taux de combustion variant de 4 à 13 at %. Le but initial de ces expériences était l'estimation de l'activité relachée dans le cadre du concept d'aiguille carbure ouverte, qui semblait très prometteur il y a quelques années. Cette étude qui a donné lieu à la mise au point d'un module d'analyse de gaz assez complet, a permis l'obtention de résultats dont la généralité dépasse l'objectif restreint fixé au départ, en apportant de nouvelles lumières - mais aussi en posant de nouvelles questions - sur le comportement des gaz sortant d'un élément combustible carbure à joint sodium.

2 - METHODES EXPERIMENTALES

2.1 - Les capsules d'irradiation

La figure 1 montre les deux types de capsules utilisées, différent par le trajet imposé aux gaz sortant du combustible. Les expériences 1 et 3 ont été effectuées dans une capsule standard dans laquelle le joint sodium et le sodium du thermosiphon ne se mélangent pas. Les gaz de fission relâchés traversent donc une faible quantité de sodium avant d'être balayés par un jet continu d'hélium à débit réglé et dirigés vers l'installation d'analyse des gaz.

L'aiguille 2 a été irradiée dans une capsule d'un type différent ; au but recherché s'ajoutait en effet l'étude de la faisabilité d'un joint sodium en pile, à partir du sodium de la capsule ; un enregistrement de la température centrale du combustible devait permettre le contrôle de l'opération ; le thermocouple n'ayant pas fonctionné, cette aiguille a surtout servi à tester les appareillages et à mettre au point les méthodes d'analyse

de gaz ; de ce fait et à cause du trajet complexe des gaz de fission dans le sodium de l'aiguille, puis dans celui de la capsule, il ne faudra attendre de cette irradiation ni des résultats complets, ni des comparaisons directes avec les deux autres (1 et 3).

2.2 - Les conditions d'irradiation

Les trois expériences ont des paramètres semblables ; les colonnes fissiles ont une géométrie standard : 220 mm de longueur, environ 6 mm de diamètre ; le joint sodium a initialement une épaisseur de 0,4 mm. La puissance linéaire - nominale 900 W/cm - peut être modifiée par déplacement de la capsule. Une évaluation précise de cette puissance peut être effectuée à partir des mesures de flux neutronique d'un collecteur associé à la capsule. La thermique du combustible est déterminée d'une part par la puissance, d'autre part par le contrôle de la composition d'une lame de gaz séparant le thermosiphon de la piscine du réacteur ; le contrôle du bon fonctionnement thermique est assuré par un certain nombre de thermocouples placés à différents endroits de la capsule.

Les expériences 1 et 2 ont atteint des taux de combustion respectifs de 4 at % et de 13 at % ; l'expérience 3, toujours en pile, a atteint à ce jour 7 at % de taux de combustion, mais nous comptons la poursuivre aussi loin que possible.

2.3 - L'installation d'analyse des gaz (figure 2)

Le mélange formé par l'hélium et les gaz de fission relâchés par le combustible passe tout d'abord devant un compteur proportionnel dont le signal de sortie, enregistré en continu, est à chaque instant proportionnel à son activité. L'information étant globale (tous nucléides réunis) il n'est pas possible de remonter de cette seule mesure à une information quantitative sur le débit volumique des gaz considérés. L'information qualitative obtenue s'avèrera néanmoins de la plus grande utilité.

Les gaz peuvent ensuite être dirigés vers l'un ou l'autre des deux modules d'analyse suivant :

- un spectromètre gamma formé d'un cristal Ge-Li couplé à un analyseur multicanaux et à une unité de traitement de l'information, permettant une mesure, nuclide par nuclide, de l'activité du contenu d'un réservoir de 10 cm^3 ; la mesure peut être effectuée en balayage, ce qui est le cas le plus

fréquent, ou, réservoir isolé, en décroissance, cette dernière méthode s'avérant parfois utile pour éliminer les signaux parasites dus à une impureté de très courte période, le Ne^{23} , ou encore dans le cas d'un très fort niveau de débit d'activité ; il existe également une possibilité de réduire le signal par dilution des gaz dans de l'hélium en différentes proportions au moyen d'un système de réservoirs et de canalisations schématisé dans la partie droite de la figure 2.

- un système de piège froid destiné à stocker les gaz stables qui seront analysés ultérieurement par chromatographie ; le niveau relativement bas du relâchement nécessite des temps de stockage compris entre quelques heures et un cycle complet du réacteur (20 jours).

Dans la configuration actuelle de l'installation, ces deux modules ne peuvent être mis en service simultanément sur la même expérience - autrement dit il n'est pas possible de faire simultanément des analyses quantitatives des gaz stables et des gaz radioactifs.

3 - RESULTATS

3.1 - Généralités

Vitesse de production des gaz stables : la vitesse de production de l'ensemble des xénon et des kryptons stables correspond, pour l'ensemble de l'aiguille fonctionnant dans les conditions nominales, à 500 mm^3 TPN par jour soit $1,5 \times 10^{14}$ atomes /s.

Vitesse de production des gaz radioactifs : le tableau 1 donne pour les nuclides les plus importants la constante radioactive λ , la période T, et la vitesse de production en at / s pour l'ensemble de la colonne fissile ; seuls Xe^{133} , Xe^{133m} , Xe^{135} , Xe^{135m} ont des précurseurs à durée de vie non négligeable, et par suite un comportement différent des autres considérés en première approximation comme produits directement par fission. Tous les nuclides du tableau 1 excepté Xe^{133m} possèdent des raies γ ayant un niveau suffisant pour permettre des mesures quantitatives précises au compteur Ge-Li.

Paramètres exprimant le relâchement

Si on appelle respectivement B_i et R_i les quantités de nuclide i produits et relâchés par seconde, on s'intéressera suivant le cas à l'un ou l'autre des deux paramètres suivants :

- pour les gaz radioactifs : $\frac{R_i}{B_i}$ (vitesse de relâchement normalisée)
le R_i étant évalué au niveau des gaz sortant du sodium.

- pour les gaz stables : F (fraction relâchée) définie par

$$F = \frac{\sum R_j dt}{\sum B_j dt} \quad \text{les } \Sigma \text{ étant effectués sur l'ensemble des nuclides stables.}$$

Spécialisation des expériences

Les irradiations 1 et 3 étant en tous points identiques, après vérification sur un cycle de réacteur de la cohérence des résultats comparés des deux expériences, nous avons spécialisé 1 dans l'étude du relâchement $\frac{R_i}{B_i}$ en fonction de λ_i pour les gaz instables et 3 dans l'étude de la fraction F des gaz stables relâchés. L'irradiation 2 a été en revanche étudiée de façon répartie sous les 2 aspects, d'où l'absence d'une information continue sur les gaz stables, nécessaire au calcul de F ; de ce fait, et à cause des difficultés supplémentaires dues au fonctionnement de la capsule, nous considérerons 2 comme une expérience de mise au point et nous attacherons notre effort d'interprétation principalement aux expériences 1 et 3.

3.2 - Mesures d'activité globale (compteur proportionnel)

L'analyse des enregistrements donne lieu à deux constatations importantes :

- la plus grande proportion des gaz est relâchée lors d'évènements ponctuels de haute activité que nous avons appelés "bouffées" (ce fait a été observé sur les trois expériences).

- la fréquence d'émission de ces bouffées augmente brusquement à un certain taux de combustion de l'ordre de 3 atomes %.

Le comptage cycle par cycle du nombre de bouffées a été reporté sur la figure 3.

Dans les premiers temps de l'irradiation (figure 4a) on observe des bouffées importantes, dont l'activité est 10^4 fois le niveau de base, séparées par des périodes de calme de l'ordre du jour. Des mesures ultérieures

sur les gaz stables ont permis d'évaluer :

- l'ordre de grandeur du contenu d'une bouffée : 100 mm^3 TPN.
- la vitesse de relâchement entre deux bouffées consécutives $3 \text{ mm}^3/\text{j}$.

Aux taux de combustion supérieurs à 3 at % (figure 4b) la fréquence d'émission des bouffées devient si importante qu'il n'est plus possible d'observer un signal de base entre deux bouffées successives. A ce stade, le taux de relâchement moyen est de l'ordre de 75 mm^3 TPN par jour.

3.3 - Mesures quantitatives sur les gaz stables

Ces mesures ont été principalement effectuées sur 3, le stockage des gaz ayant eu lieu cycle par cycle. La variation de F est reportée sur la figure 5.

On observe une augmentation brusque de la vitesse de relâchement à partir de 2,8 at %. Ce fait est à rapprocher du comptage des bouffées de la figure 3, qui a été reproduit sur la figure 5.

Sur la figure 6 nous avons rassemblé les mesures de gaz post-irradiation effectuées sur des aiguilles à joint sodium irradiées dans des conditions analogues soit en neutrons thermiques (cercles pleins) soit en neutrons rapides (cercles vides). Les mesures en pile effectuées sur 3 s'inscrivent bien dans cet ensemble. Trois points de cette figure s'écartent de la tendance générale : deux points correspondant à des puissances linéaires locales inférieures (de l'ordre de 700 W/cm) et une mesure sur une aiguille intégrant l'ensemble de la colonne fissile.

3.4 - Mesures quantitatives sur les gaz radioactifs (compteur γ Ge-Li)

Guidés par les résultats du 3.2 nous avons fait des mesures dans trois conditions de relâchement :

- a) mesures du niveau continu entre deux bouffées consécutives
(à faible taux de combustion)
- b) mesures sur une bouffée isolée de taille importante
- c) mesures intégrant plusieurs bouffées, à taux de combustion élevé lorsque la fréquence d'émission des bouffées est importante.

Dans tous les cas, la quantité mesurée par le compteur Ge Li est l'activité ou le débit d'activité dans le réservoir de 10 cm^3 (fig. 2). Toutes les corrections de temps de transit et/ou de temps de dilution et de mesure sont effectuées, de façon à atteindre le taux de relâchement au niveau du sodium de la capsule.

3.4.1. - Niveau continu entre deux bouffées consécutives à faible taux de combustion

Les résultats constituent une partie de la figure 7 sous la forme R/B en fonction de λ .

Deux faits importants sont à noter :

- un comportement différent des nuclides suivant qu'ils ont un précurseur à durée de vie non négligeable (Xe^{133} , Xe^{135} , Xe^{135m}) ou qu'ils sont produits directement par fission.

- pour chacune de ces classes de nuclides, les points expérimentaux s'alignent avec une grande précision en coordonnées logarithmiques, autrement dit

$$\frac{R}{B} = \frac{A}{\lambda n}$$

avec $\left\{ \begin{array}{l} n \text{ compris entre } 0,5 \text{ et } 1 \text{ (suivant la mesure) pour les nuclides sans} \\ \text{précurseur} \\ n \text{ compris entre } 0 \text{ et } 0,5 \text{ pour les nuclides avec précurseur.} \end{array} \right.$

Cet alignement rigoureux des points expérimentaux nous a paru si surprenant que nous nous sommes demandés s'il ne pouvait pas être dû au hasard, aidé éventuellement par les "bonnes" propriétés du quadrillage logarithmique.

Sur la figure 8 on a extrait d'une même mesure différents paramètres fonction de λ , le relâchement mesuré R corrigé du temps de transit mais non normalisé (proportionnel à l'activité), R/B normalisé mais non corrigé et enfin R/B . On voit bien que seul ce dernier paramètre, rapporté à la vitesse de production et corrigé du temps de transit et de mesure, donne lieu à des points alignés.

3.4.2. - Mesures sur des bouffées isolées

là encore, les résultats expérimentaux se présentent sous forme de points alignés pour chacune des deux catégories de nuclides (fig. 9) que les bouffées apparaissent sans cause apparente (bouffées naturelles) ou à l'occasion d'un arrêt ou d'un démarrage du réacteur (bouffées provoquées).

Cependant les valeurs de n sont très différentes de celles observées sur le relâchement continu

n compris entre 2,5 et 3 pour les nuclides sans précurseur

n compris entre 1 et 2 pour les nuclides avec précurseur

3.4.3. - Mesures intégrées sur plusieurs bouffées (à fort taux de combustion) (fig. 7)

Comme précédemment, nous obtenons des lois de la forme $\frac{R}{B} = \frac{A}{\lambda n}$, mais les valeurs de n se rapprochent de celles observées pour le régime continu de la première partie de l'irradiation ($0,5 < n < 1$ pour les nuclides sans précurseur, $0 < n < 0,5$ pour les nuclides avec précurseur). Evidemment, le niveau général du relâchement est beaucoup plus important que dans le premier cas.

4 - DISCUSSION ET CONCLUSION

De la masse des résultats expérimentaux nous retiendrons les faits saillants suivants :

- a) la plus grande partie du gaz est relâchée sous forme de bouffées
- b) le relâchement des gaz stables s'accélère fortement après un temps d'incubation correspondant à un taux de combustion de 3 at%.
- c) les bouffées de début de vie ont une taille importante atteignant 100 mm^3 TPN.
- d) Pour chacun des modes de relâchement observés, et pour chacune des classes de nuclides, les gaz radioactifs suivent une loi de la forme $\frac{R}{B} = \frac{A}{\lambda n}$.

Si l'on met en parallèle les points a et b avec les prédictions de plusieurs modèles théoriques existants /1-4/ qui prévoient un relâchement continu au niveau du combustible, on est obligé d'attribuer l'existence de bouffées au fonctionnement du joint sodium, c'est à dire à la nucléation, la croissance et la coalescence de bulles de gaz dans le sodium.

On peut considérer en revanche que la courbe $F(t)$ résultant de l'analyse des gaz stables représente la cinétique de sortie du gaz au niveau du combustible, puisque le principe même de la mesure intègre un grand nombre de bouffées ; le résultat observé (point b) est d'ailleurs tout à fait cohérent avec un modèle tel que /1/.

En ce qui concerne le point c, il semble exclu que des bouffées de 100 mm^3 TPN préexistent sous forme de bulles dans le joint sodium lui-même : une telle bulle occuperait la totalité du volume de joint adjacent à 3 ou 4 pastilles, et la baisse de coefficient de transfert de chaleur qui en résulterait provoquerait la fusion du combustible jusqu'en périphérie, phénomène qui n'a jamais été observé. D'où la conclusion : une bouffée est formée soit par une grosse bulle piégée quelque part au dessus de la colonne fissile, qui se détache lorsqu'elle a atteint une certaine taille, soit par le relâchement simultané d'un grand nombre de bulles plus petites.

Le point d est le résultat le plus délicat à expliquer.

Pour simplifier nous considérerons uniquement les nuclides sans précurseur. Du fait de la durée de vie limitée des gaz radioactifs, le mode prédominant de sortie du combustible est le recul. Un recul instantané donnerait lieu à un R/B indépendant de λ , autrement dit un exposant n nul. Si l'on admet que le flux gazeux obéit à cette loi à sa sortie du combustible, il nous faut alors expliquer les valeurs de n observées - la figure 10 illustrera notre propos.

Théorie		Nos expériences (gaz sans précurseur)
recul (niveau carbure)	→	-0
bulles de type A	→	-1 <input type="checkbox"/> niveau continu
bulles de type B	→	-2
bulles de type C	→	-3 <input type="checkbox"/> bouffées de début de vie

Fig. 10 - Valeurs de l'exposant n (loi $R/B = A/\lambda^n$)

Pour le relâchement "continu" entre bouffées on a $0,5 < n < 1$ (plus proche de 1). Nous pensons que ce régime de relâchement correspond à des bulles très petites, alimentées continuellement par les atomes provenant du recul ; si on appelle N_i le nombre d'atomes du nuclide i dans une bulle de ce type, on a

$$\frac{dN_i}{dt} = kB_i - \lambda_i N_i \text{ d'où } \frac{N_i}{B_i} = \frac{k(1 - e^{-\lambda_i t})}{\lambda_i}$$

où kB_i est le flux d'atomes de recul alimentant la bulle.

Lorsque l'équilibre est atteint $\frac{N_i}{B_i} = \frac{k}{\lambda_i}$, autrement dit $n = 1$; Pour rendre compte du léger décalage subsistant entre ce modèle et l'expérience il faudrait tenir compte de phénomènes tels que le comportement du gaz dans le combustible, la diffusion atomique du gaz dans le sodium, le relâchement de bulles n'ayant pas atteint l'équilibre radioactif.

Avant de passer à l'interprétation de la valeur de n dans les grosses bouffées de début de vie, il est intéressant de noter qu'un phénomène d'alimentation de bulles d'une certaine taille par un flux formé de bulles plus petites, a pour résultat d'augmenter l'exposant n d'une unité (fig. 10), le calcul très simple, est fait en annexe.

L'exposant n des bouffées ($2,5 < n < 3$) pourrait s'expliquer ainsi par deux phénomènes de dilution en cascade à partir des microbulles constituant le relâchement continu ; tentons d'illustrer cette possibilité par un scénario plausible illustré par la figure 11 :

Des bulles très petites (que nous appellerons bulles de type A) germent de façon homogène dans le joint sodium, à partir du flux formé par les atomes de recul. Simultanément des bulles plus grosses (type B) essentiellement constituées de gaz stables sortant du combustible par diffusion, croissent à la surface des pastilles. Le relâchement continu entre deux bouffées consiste en bulles de type A ($0,5 < n < 1$). Les bulles de type B sont dans le même temps constamment alimentées par des bulles A ($1,5 < n < 2$). A certains instants ces bulles B quittent la surface du combustible et viennent nourrir une bulle de très grande taille (type C) piégée quelque part dans le sodium de la partie supérieure de l'aiguille. Lorsqu'une telle

bulle C est relâchée on observe une bouffée avec n dans l'intervalle 2,5 - 3. Lorsque le relâchement des gaz stables augmente, la fréquence du second évènement (relâchement des bulles B) augmente également, ainsi que la fréquence des bouffées ; mais nous sommes alors dans la deuxième phase de l'irradiation. Les bulles A et B arrivant sont si nombreuses que les bulles C n'ont plus le temps de se former ; le relâchement consiste alors en bulles A et en bulles B, et on explique ainsi la valeur de n observée pendant la deuxième phase de l'irradiation.

Le défaut essentiel de ce scénario est de ne pas reposer sur des observations indiscutables ; c'est pourquoi nous ne le considérons que comme une tentative - parmi d'autres possibles - pour rendre compte du fait expérimental établi par nos expériences : les lois $\frac{R}{B} = \frac{A}{\lambda n}$; quelque explication que l'on trouve par la suite, il semble évident qu'elle s'intégrera dans le cadre général du comportement d'une population de bulles de gaz de différentes tailles au sein du sodium, lesquelles bulles seront alimentées par le gaz sortant du combustible.

Pour préciser notre connaissance de ces phénomènes il faudrait effectuer des expériences semblables sur des combustibles à joint hélium. La comparaison de leurs résultats avec ceux présentés ici serait en effet susceptible d'apporter des lumières plus précises sur le comportement du gaz dans le sodium. A ce sujet des expériences hors pile d'alimentation d'une couche de sodium par du gaz finement divisé seraient également souhaitables.

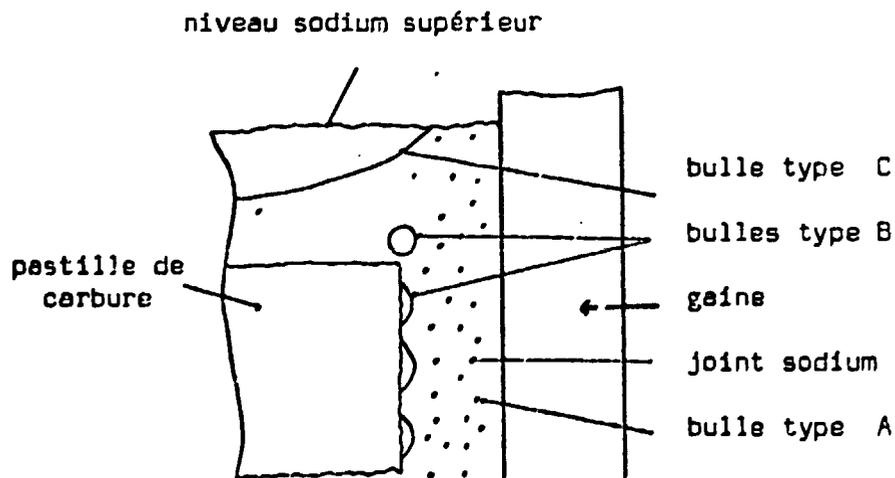


Fig. 11 : Illustration du scénario décrit

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- /1/ C. RONCHI, HJ. MATZKE
Calculations on the in pile behaviour of fission gas in oxide fuels
Rapport EUR 4877^B - 1972
- /2/ MH. WOOD - M.R. HAYNS
AERE R 8012
- /3/ H.R. WARNER - F.A. MICHOLS
Nucl. Appl. and Tech. 9 (1970) p 148
- /4/ P. PRAJOTO - A.R. WAZZAN - D. OKRENT
Nucl. Eng. and Design 48 (1978) p 416 - 495
- ./.

A N N E X E

Considérons une population de petites bulles A ayant une composition constante ; soit n_i le nombre d'atomes de nuclide i dans une telle bulle avec $\frac{n_i}{B_i} = A/\lambda_i^\alpha$ (1)

Soit une grosse bulle B (en majorité formée de gaz stables) alimentée de façon continue par des bulles A. Soit p le nombre de bulles A alimentant par seconde la bulle B, et soit N_i le nombre d'atomes de nuclide i à l'instant t dans la bulle B. La variable N_i vérifie donc l'équation différentielle

$$\frac{dN_i}{dt} = pn_i - \lambda_i N_i \quad (2)$$

Remplaçant n_i dans l'équation (2) par sa valeur calculée dans (1) et résolvant ensuite l'équation (2) on obtient

$$\frac{N_i}{B_i} = \frac{pA}{\lambda_i^{\alpha+1}} (1 - e^{-\lambda_i t})$$

A l'équilibre radioactif le facteur entre parenthèses tend vers 1 d'où le résultat annoncé.

Nuclide	Constante radio- active λ sec ⁻¹	Période T	Précurseurs	B_1 at/s ($l = 22$ cm) ($P_1 = 900$ W/cm)
Kr ⁸⁵	considéré comme stable : T = 10,4 ans			
Xe ¹³³	1,52 10^{-6}	5,28 j	I ¹³³ (20,3 h), Xe ^{133m}	4,24 10^{13}
Xe ^{133m}	3,60 10^{-6}	2,23 j	I ¹³³ (20,3 h)	1,32 10^{12}
Xe ¹³⁵	2,10 10^{-5}	9,17 h	I ¹³⁵ (6,7 h), Xe ^{135m}	4,42 10^{13}
Kr ^{85m}	4,30 10^{-5}	4,48 h		4,9 10^{12}
Kr ⁸⁸	6,88 10^{-5}	2,80 h		1,26 10^{13}
Kr ⁸⁷	1,52 10^{-4}	1,27 h		9,02 10^{12}
Xe ^{135m}	7,55 10^{-4}	15,3 mn	I ¹³⁵ (6,7 h)	8,55 10^{12}
Xe ¹³⁸	8,14 10^{-4}	14,2 mn		3,28 10^{13}
Xe ¹³⁷	3,01 10^{-3}	3,84 mn		3,81 10^{13}
Kr ⁸⁹	3,66 10^{-3}	3,16 mn		1,54 10^{13}

Tableau 1 - Données relatives aux gaz radioactifs

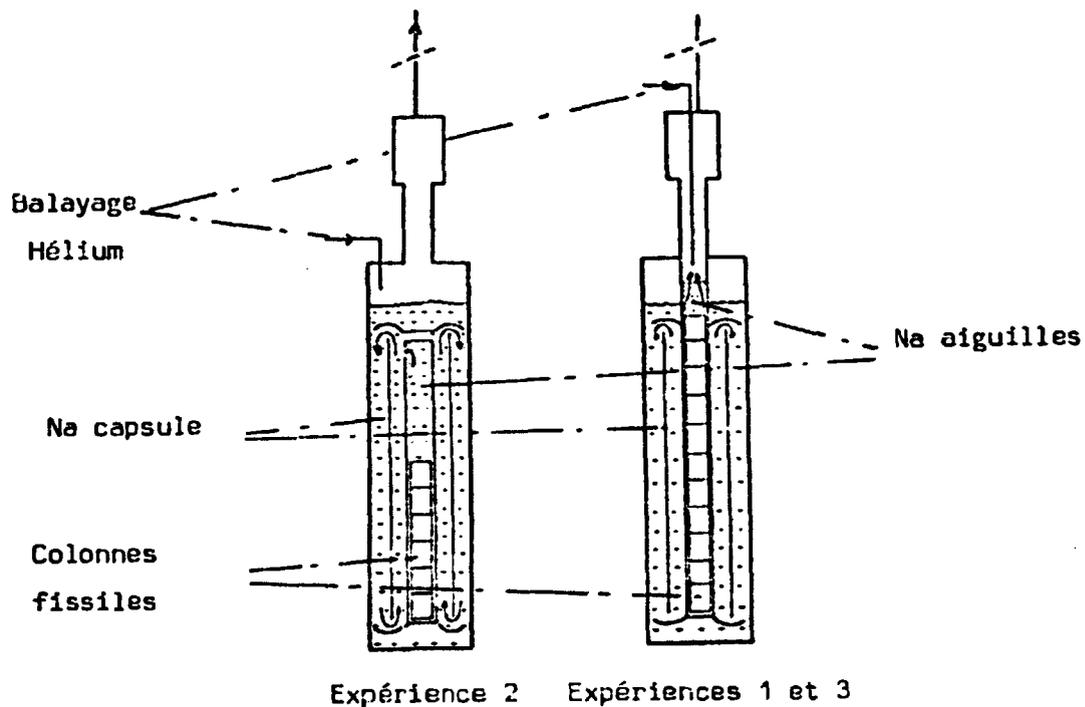


Fig. 1 : Dispositifs d'irradiation

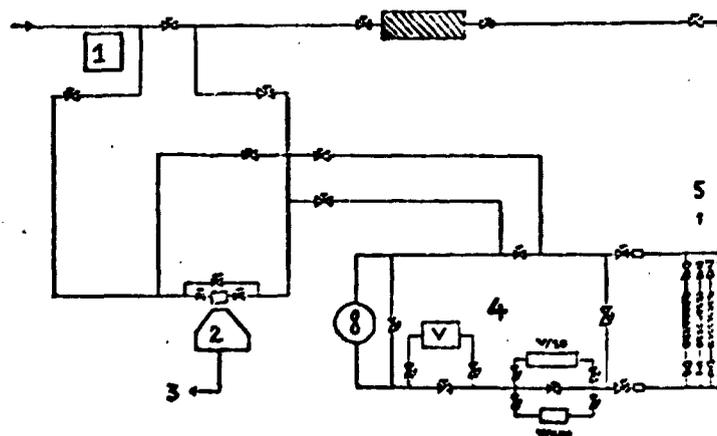


Fig. 2 : Ensemble d'analyse des gaz

- 1 : Compteur proportionnel
- 2 : Compteur Ge Li
- 3 : Chaîne de traitement et de stockage du signal
- 4 : Module de dilution
- 5 : Pièges froids pour l'analyse par chromatographie des gaz stables.

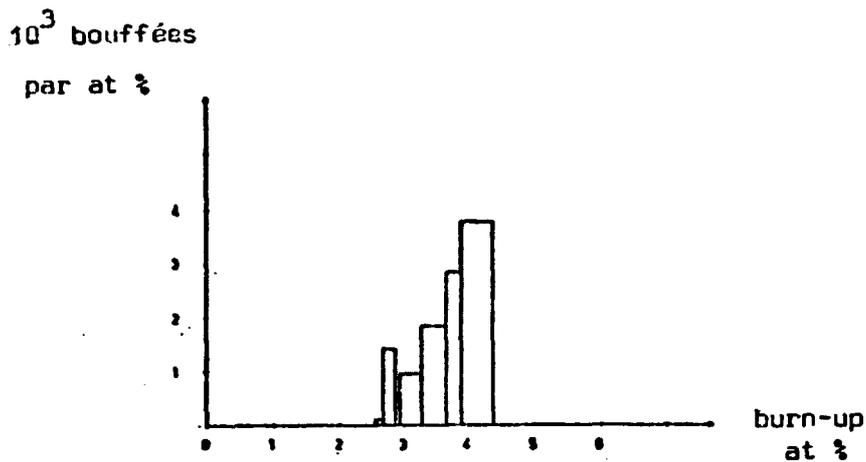


Fig. 3 : Fréquence des bouffées

Activité globale
du gaz relâché

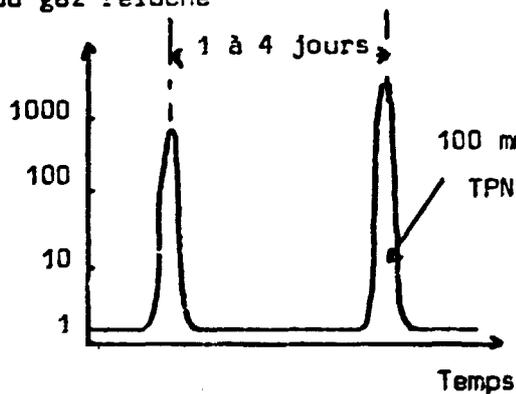


Fig. 4a : Régime observé pour
 $\tau < 3$ at %

Activité globale
du gaz relâché

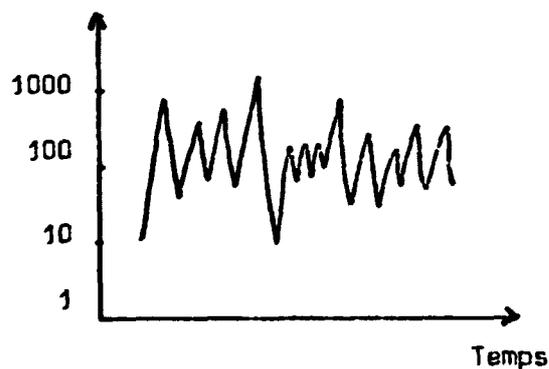


Fig. 4b : Régime observé pour
 $\tau > 3$ at %

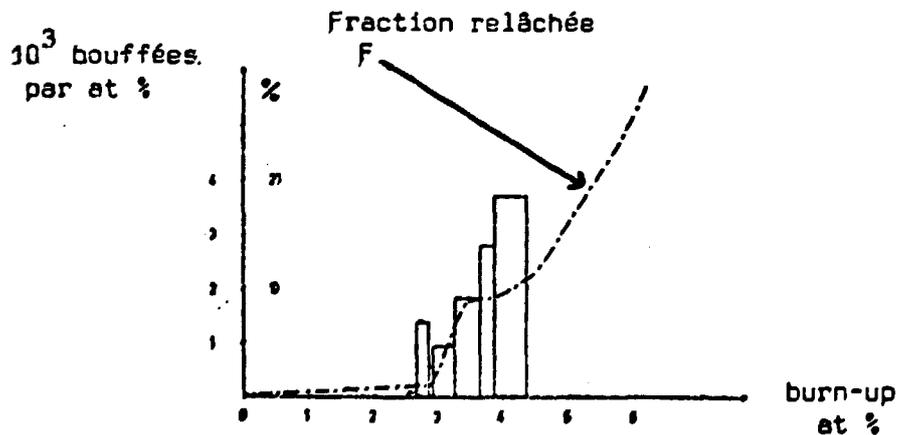


Fig. 5 : Fréquence des bouffées et taux de relâchement F (stables)

Fraction relâchée

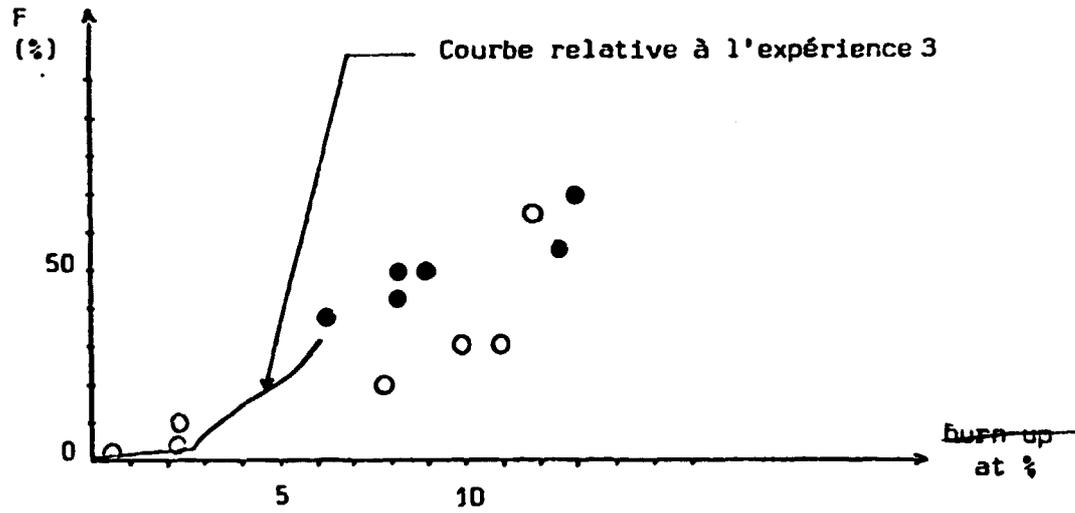


Fig. 6 : Evolution du taux de relâchement F (stables) des carbures joint sodium avec le ~~nombre~~ *taux de comb.*

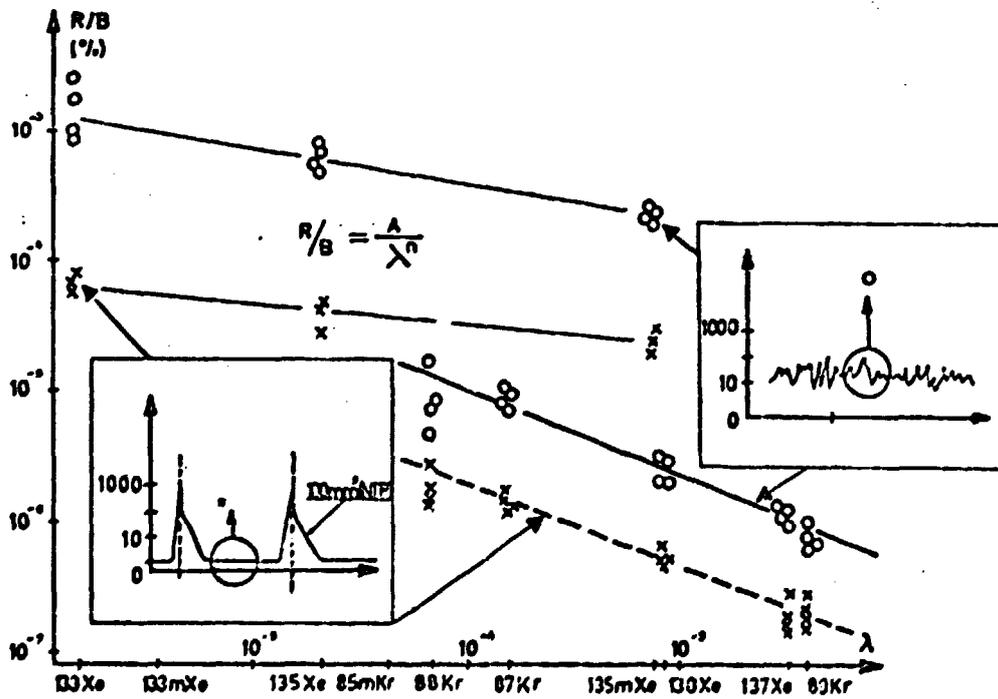


Fig. 7 : Relâchement instantané R/B (instables) en fonction de λ dans les divers régimes observés.

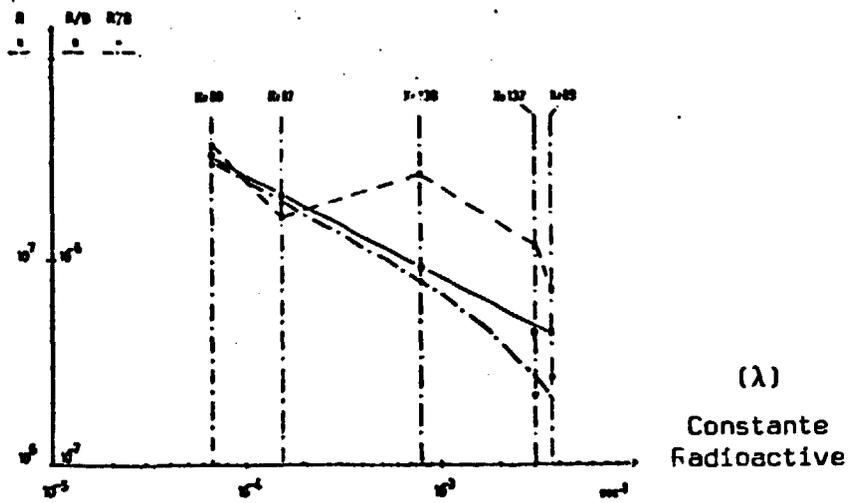


Fig. 8 : R , R/B , R^x/B , fonction de λ
pour une mesure particulière

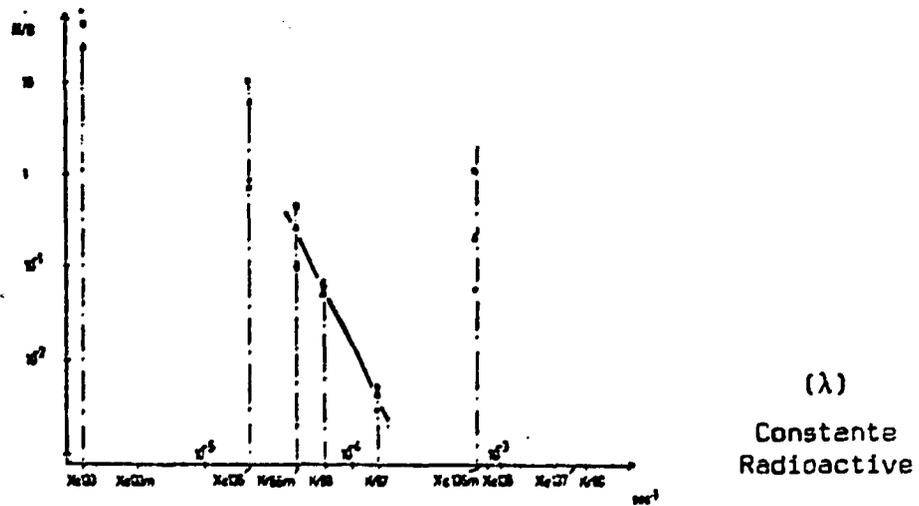


Fig. 9 : Quantité normalisée N/B (gaz instables) dans
les bouffées fonction de λ

