# Résultats des deux premiers essais PhébuS PF, FTP-0 et FTP-1

• S. BOURDON (IRSN)

6

• D. JACQUEMAIN (IRSN)

 R. ZEYEN (JRC/PETTEN)

e programme international Phébus PF (produits de fission) est constitué d'une série d'essais en pile visant à étudier les principaux phénomènes physiques pouvant se produire dans un réacteur à eau sous pression (REP) durant un accident grave: en particulier, la dégradation des crayons combustibles, le relâchement, le transport et la physico-chimie des matériaux radioactifs dans le circuit primaire et l'enceinte de confinement. Trois essais simulant les phénomènes physiques typiques d'un accident de perte de réfrigérant primaire à basse pression ont été réalisés avec succès : deux essais sous une atmosphère riche en vapeur d'eau (FPT-0 et FPT-1) et un essai avec une phase réductrice significative (FPT-2). FPT-0 a été réalisé en décembre 1993 avec du combustible faiblement irradié, FPT-1, en juillet 1996 et, finalement, FPT-2, en octobre 2000, avec du combustible irradié. Les objectifs des deux premiers essais étaient d'obtenir une dégradation significative de la grappe jusqu'à une liquéfaction d'environ 20 % en masse du combustible et le relâchement de 70 à 80 % de PF volatils.

Ces essais ont fourni des données expérimentales d'intérêt capital dans le domaine de la dégradation du combustible et du comportement des PF. L'analyse des données des essais FPT-0 et FPT-1 est maintenant terminée et celle de FPT-2 est actuellement en cours. Les principales observations obtenues dans les deux premiers essais sont décrites dans les sections suivantes.

# Conceptions des grappes d'essai et des circuits expérimentaux

Les grappes expérimentales utilisées dans les essais FPT-0 et FPT-1 sont de conception très semblable. Les grappes d'essai contenaient vingt crayons combustibles REP et un crayon de commande constitué d'un matériau absorbant en alliage argent, indium, cadmium (AIC), contenu dans une gaine en acier inoxydable et un tube guide en zircaloy (**figure 1**, page 46). La grappe de l'essai FPT-1 comprenait dix-huit Programme Phébus



crayons combustibles REP préalablement irradiés à un taux de combustion moyen de 23,4 GWj/tU alors que les vingt crayons FPT-0 étaient constitués de combustible vierge. Les crayons combustibles mesuraient environ 1 m de longueur et contenaient une masse de combustible de 11 kg environ placée dans des gaines en zircaloy. Les grappes étaient ensuite logées dans un boîtier isolant et introduites dans un tube refroidi par un circuit d'eau pressurisée. La section d'essai était alors disposée dans une cellule au centre du réacteur Phébus. Les grappes combustibles étaient ensuite légèrement réirradiées pendant quelques jours dans le réacteur Phébus. Les différents éléments, en aval de la grappe, simulaient les principaux constituants d'un REP standard : une section de la branche chaude du circuit primaire (700 °C), une épingle du générateur de vapeur, une section de la branche froide du circuit primaire (150 °C) et l'enceinte de confinement (figure 2, page 46).



### Déroulement de l'expérience

La phase de dégradation de la grappe a duré entre cing et six heures. Durant cette phase, la puissance de la grappe et le débit de vapeur ont été augmentés par paliers successifs (figure 3) afin d'élever progressivement la température des cravons combustibles jusqu'à l'éclatement des gaines, la dégradation du crayon de commande et la relocalisation des matériaux absorbants, l'oxydation des gaines en zircaloy et la production d'hydrogène, la liquéfaction et la délocalisation du combustible. l'accumulation des mélanges liquéfiés et la formation d'un bain fondu et, finalement, le relâchement des produits de fission et des matériaux de la grappe, de structure et du crayon de commande. Pendant la phase de dégradation, de la vapeur à une pression d'environ 2 bar a été injectée dans la grappe avec un débit variant entre 0,5 et 2,2 g/s, créant ainsi des conditions oxydantes ou "riches en vapeur" pour la chimie des produits de fission. Suite à la phase de dégradation, les phases expérimentales dans l'enceinte (phase aérosol et de chimie) ont duré environ cinq jours afin d'étudier les processus de déposition des aérosols et de radiochimie de l'iode dans l'eau du puisard et dans l'atmosphère.

# Résultats de la dégradation de la grappe

Au début des phases de dégradation des essais FPT-0 et FPT-1, les ruptures des gaines en zircaloy dues à une augmentation de la pression à l'intérieur des crayons se sont produites vers environ 800 °C (température maximale mesurée à mi-hauteur de la grappe). Les ruptures des gaines ont été clairement identifiées par la détection de produits de fission à l'intérieur de l'enceinte en conjonction avec la présence d'aérosols dans le circuit.

On a observé la rupture du crayon de commande dans les essais FPT-0 et FPT-1 juste avant l'emballement de la réaction d'oxydation du zircaloy grâce à la détection d'In<sup>116m</sup> dans le circuit pour une température maximale dans la grappe se situant entre 1160 et 1330 °C. Ces résultats indiquent que la rupture du crayon de commande s'est produite à une température inférieure au point de fusion de l'acier inoxydable. La dégradation précoce du crayon de commande est probablement due aux interactions chimiques entre le revêtement en acier inoxydable (Inox) et le tube guide en zircaloy. Le mélange liquéfié (AIC, Inox, Zry) est probablement descendu vers la grille inférieure pendant la période d'oxydation et s'est solidifié dans la partie basse de la grappe pour former une masse métallique solide (riche en Aq-Zry).

La présence d'hydrogène dans le circuit PF, indiquant l'oxydation du zircaloy, a été détectée pour des températures du combustible supérieures à 1100°C dans la partie haute de la grappe. Une augmentation des taux d'échauffement des crayons combustibles a été mesurée lors des deux essais pour une température maximale de la grappe de 1550-1650 °C. Des pics de température de 2500°C et de 2200°C ont été observés dans les essais FPT-0 et FPT-1, avec des taux d'échauffement atteignant 10 à 15 °C/s. La majorité de l'hydrogène produit lors des essais l'a été pendant la période d'emballement. Dans ces deux essais, cependant, on n'a pas mesuré de conditions totalement réductrices en sortie de la grappe. On a observé un deuxième pic de génération d'hydrogène dans l'essai FPT-1 durant les vingt dernières minutes du transitoire. Cette période d'oxydation tardive est probablement due au déplacement du bain fondu vers une zone plus froide où les gaines n'avaient pas encore été complètement oxydées. La masse totale d'hydrogène libérée est aux environs de 115 g dans FPT-0 et de 96 g dans FPT-1; ceci correspond à une oxydation de 77 % et de 64 % de la masse initiale de zircaloy dans la grappe.

L'analyse de ces essais indique qu'un déplacement significatif de matériaux s'est produit dans les deux essais au début de la période d'échauffement alors que la température maximale du combustible se situait entre 2 000 et 2 300 °C. Une

Un déplacement significatif de matériaux s'est produit dans les deux essais au début de la période d'échauffement alors que la température maximale du combustible se situait entre 2 000 et 2 300 °C.



délocalisation du combustible à basse température (environ 500 °C en dessous de la température de fusion de l'UO<sub>2</sub> pur) pourrait s'expliquer par la formation de mélanges eutectiques dans la moitié supérieure de la grappe entre les matériaux du crayon absorbant, la gaine (Inox) contenant des oxydes de fer, nickel, chrome, et le tube guide en zircaloy partiellement oxydé. Lors de la période d'échauffement, les mélanges résultants ont progressé vers le bas, à travers la grille supérieure. Dans la partie centrale de la grappe, dans des zones plus chaudes, des interactions chimiques entre ces mélanges, les matériaux absorbants et les crayons combustibles peuvent s'être produites. Ce processus a probablement conduit à la dégradation des crayons combustibles dans la moitié supérieure de la grappe avec l'accumulation partielle des matériaux interagissants près de la grille inférieure. L'analyse des mesures de température de la grappe et du boîtier a montré que la dégradation et la relocalisation des crayons combustibles étaient des processus progressifs tout au long de la période d'échauffement qui conduisaient à la formation d'un bain fondu homogène au niveau de la grille inférieure. Les essais se sont terminés par l'arrêt du réacteur lorsque des augmentations rapides et importantes des températures ont été détectées dans la partie inférieure du boîtier.

47

# Examens post-expérimentaux et état final de la grappe

Les gamma scannings, les radiographies, les tomographies et les examens destructifs ont confirmé la dégradation avancée des grappes d'essai FPT-0 et FPT-1 (figure 4, page 47). L'analyse des examens post-irradiation (PIE) des grappes d'essai a montré une accumulation d'un corium de la forme (U-Zr)O2 dans la partie inférieure de la grappe, contenant 1 à 2 % en poids d'oxydes de fer et de chrome. Les PIE ont également indiqué la formation d'une masse métallique riche en Ag juste au-dessous de l'accumulation riche en UO<sub>2</sub>. Les analyses des tomographies ont permis l'évaluation de la masse totale d'UO<sub>2</sub> dans le bain fondu : environ 2,6 kg dans FPT-0 et 2 kg dans FPT-1. En outre, la température de fusion du corium dans la partie inférieure de la grappe telle que mesurée dans les PIE se situe autour de 2500°C. D'après les



résultats des PIE réalisés sur la grappe FPT-1, il est également possible d'observer que les crayons combustibles vierges sont significativement moins dégradés que les crayons préalablement irradiés.

# Résultats dans les circuits expérimentaux

## RELÂCHEMENT ET TRANSPORT DES PRODUITS DE FISSION, DES MATÉRIAUX COMBUSTIBLES, DES STRUCTURES ET DE LA BARRE DE COMMANDE

Les fractions relâchées de la grappe sont comparables dans FPT-0 et FPT-1, avec des valeurs légèrement plus faibles pour les produits de fission (PF) volatils dans le cas de FPT-1. Ces valeurs plus faibles peuvent être expliquées par l'état de dégradation moins avancé dans le deuxième essai. Dans FPT-1, la fraction de matière combustible (U) relâchée est proche de celle mesurée dans FPT-0. La différence de nature du combustible entre les deux essais (combustible faiblement irradié pour FPT-0 et combustible irradié pour FPT-1) ne semble pas avoir un impact significatif sur le relâchement d'U. Les éléments peuvent être classifiés en fonction de leur fraction relâchée :

- éléments ayant une fraction de relâchement élevée (environ 90 % de l'inventaire) : gaz rares Kr et Xe et PF volatils I, Cs et Te;
- éléments ayant une fraction de relâchement intermédiaire (20-60 % de l'inventaire) : Mo, Tc et Sb, et Sn provenant des structures ;
- éléments ayant une faible fraction de relâchement (5-15%): Ag et In de la barre de commande et Re des thermocouples;
- éléments ayant une très faible fraction de relâchement (inférieure à 1 % de l'inventaire) : PF faiblement volatils Ba(La), Ru, Sr, Zr-Nb, Nd et Sm (dans FPT-1), matière combustible U et Zr provenant des structures.

En somme, les résultats des essais FPT-0 et FPT-1 ont confirmé le relâchement obtenu lors d'expériences analytiques, à l'exception du Ba (rejet inférieur dans les essais Phébus).

Le relâchement et le transport de matière dans le circuit primaire durant FPT-0 et FPT-1 ont été fortement corrélés aux événements de dégradation de la grappe (**figures 5a et 5b**). Le relâchement de PF volatils est généralement maximal pendant les phases précoce et tardive d'oxydation du Zr. Leur taux de relâchement est réduit pendant la phase de propagation du bain fondu. Le relâchement du combustible, des matériaux de structure Pour FPT-1, la masse d'aérosol qui a transité dans le circuit était de 150 g dans la branche chaude et de 130 g dans la branche froide (pour initialement 11 kg de combustible).

et de l'argent (de la barre AIC) est maximal pendant la phase tardive d'oxydation.

La plupart des éléments, excepté l'iode et le cadmium, étaient déjà sous une forme condensée dans la branche chaude du circuit (700 °C). Le comportement du Cs est plus complexe que prévu, car une fraction significative du Cs est probablement transportée sous forme de vapeur et une autre, sous une forme condensée. La matière qui a été transportée sous forme de vapeur dans la branche chaude du circuit a condensé dans le tube du générateur de vapeur, de sorte que toute la matière, sauf une petite fraction d'iode, était sous une forme condensée dans la branche froide du circuit.

La matière condensée a été transportée dans la branche chaude et dans la branche froide du circuit sous forme d'aérosols multicomposants. La masse d'aérosol est dominée par les matériaux des barres de commande, des structures et du combustible. Pour FPT-1, la masse d'aérosol qui a transité dans le circuit était de 150 g dans la branche chaude et de 130 g dans la branche froide (pour initialement 11 kg de combustible). Les concentrations en masse d'aérosol étaient à leurs niveaux les plus élevés pendant la phase tardive d'oxydation. La composition en masse d'aérosol dépend des événements de dégradation de la grappe avec d'importantes contributions de l'Ag, de l'In, de Cd et de Sn pendant la première phase d'oxydation; des contributions importantes d'Ag et de Re et des contributions significatives de Cs et de Mo au début de la fusion; et des contributions dominantes d'Aq, de Re et d'U pendant la dernière phase d'oxydation.

# LA RÉTENTION DES PRODUITS DE FISSION, DES MATÉRIAUX DE LA GRAPPE, DES STRUCTURES ET DE LA BARRE DE COMMANDE DANS LE CIRCUIT

La quantité de matière qui s'est déposée à la sortie de la grappe d'essai semble être corrélée avec le degré de volatilité des différents éléments étudiés. Les vapeurs des éléments peu volatils se sont probablement condensées en premier lieu. C'est ce qui a été observé pour le Ru et le Zr; pour ces deux éléments, environ 45 % de la fraction libérée s'est déposée dans l'espace supérieur (juste à la sortie de la grappe dégradée), tandis que les dépôts dans la ligne verticale étaient faibles. Un comportement similaire a été observé dans le cas de l'Ag. Les éléments volatils se sont déposés plus faiblement dans l'espace supérieur et plus fortement dans la ligne verticale.

Dans le tube du générateur de vapeur, le dépôt d'iode et de cadmium, principalement par condensation de vapeur, est plus important que le dépôt d'aérosols, et représente environ 25 % de la masse injectée dans le tube. Le dépôt d'aérosols, essentiellement par thermophorèse, est plus faible et ne représente que 14 % de la masse qui est entrée dans le tube. La majeure partie du dépôt (85 %) s'est produite dans la branche chaude du générateur de vapeur.

### PHYSIQUE DES AÉROSOLS DANS L'ENCEINTE

Le dépôt par sédimentation est le mécanisme principal de dépôt d'aérosols dans l'enceinte : environ 65 à 70 % de l'inventaire s'est déposé par gravité sur le sol de l'enceinte. Le dépôt par diffusiophorèse (entraînement d'aérosol par condensation de la vapeur) est le deuxième mécanisme significatif de dépôt d'aérosols. Ce processus a eu pour conséquence le dépôt de 25 à 28 % de l'inventaire de l'enceinte entraîné par condensation de la vapeur sur les surfaces peintes du condenseur. Le dépôt sur les parois de l'enceinte est un mécanisme mineur de dépôt d'aérosols. En effet, seulement 2 % de l'inventaire de l'enceinte a été retrouvé sur les parois à la fin de la phase de dépôt des aérosols.

Après lavage du sol de l'enceinte, la majeure partie de l'inventaire de l'enceinte se retrouve dans le puisard, soit comme matière soluble dans le volume, soit déposée sur les surfaces principalement par gravité sur le fond du puisard. L'analyse des données indique que le Cs est présent sous forme soluble dans le puisard et que le Mo, le Tc, le Ba, le Cd et le Re y sont présents sous des

49



formes partiellement solubles. Les PF volatils I, Te et Sb, les PF peu volatils Ru, La, Sm et Nd, les éléments Ag et In de la barre de commande et, finalement, les éléments combustibles, de structure et les actinides sont essentiellement insolubles et se retrouvent sous une forme particulaire dans le puisard.

L'analyse des données a permis d'établir un bilan complet pour l'ensemble des éléments d'intérêt dans le circuit et dans l'enceinte à la fin de l'essai, comme illustré pour l'iode en **figure 6**.

#### **C**OMPORTEMENT SPÉCIFIQUE DE L'IODE

Dans les deux essais, l'iode a été presque totalement relâché (environ 87 % de l'inventaire initial) – sous forme gazeuse – de la grappe combustible. Directement au-dessus de la grappe, l'iode gazeux a probablement réagi partiellement avec l'Ag, l'In, le Cs ou le Rb pour former une vapeur d'iodure métallique. Dans la branche chaude du circuit, de 20 à 30 % du débit d'iode peut être attribué à de l'iode gazeux. L'iode est ensuite transporté vers le tube du générateur de vapeur, où il se dépose plus que n'importe quel autre élément (23,5 % de l'inventaire de la grappe dans FPT-0, 19,2 %, dans FPT-1). Le dépôt est dû soit à la condensation d'une vapeur d'iodure de métal dans le fluide et sur la paroi du tube, soit à la chimisorption d'iode gazeux sur des dépôts de Cd, soit à la condensation d'iode sur des aérosols qui se déposent ensuite par thermophorèse. Dans la branche froide du circuit, la majeure partie de l'iode est apparemment transportée par des aérosols.

Plus de 60 % de l'inventaire d'iode de la grappe a été injecté dans l'enceinte (63 % dans FPT-0 et 64 % dans FPT-1). La majeure partie de cet iode a été transportée par les aérosols qui se sont déposés sur le fond ou sur les surfaces de l'enceinte (essentiellement avec la condensation de vapeur par diffusiophorèse sur les surfaces peintes du condenseur).

Dans les deux essais, les fractions gazeuses d'iode mesurées dans l'enceinte étaient à leur niveau le plus élevé pendant les phases – ou à la suite des

phases - d'oxydation du Zr (environ 0,2 % de l'inventaire de la grappe, représentant 4 % de l'inventaire de l'enceinte à ce moment-là, pendant la première phase d'oxydation dans FPT-1, et environ 3% de l'inventaire de la grappe, représentant 33 % de l'inventaire de l'enceinte à ce momentlà, dans FPT-0). Après les deux phases d'oxydation dans FPT-1, la fraction gazeuse d'iode a diminué d'un facteur 2 en moins d'une heure. Ceci est lié à l'entraînement d'iode gazeux avec la condensation de la vapeur (diffusiophorèse) sur les surfaces peintes et/ou à une transformation chimique rapide de l'espèce d'iode considérée. La fraction volatile de l'iode provenant du circuit primaire a également disparu en quelques heures dans FPT-0, probablement par dépôt sur les surfaces de l'enceinte (condenseurs peints).

L'évolution de la fraction gazeuse d'iode pendant la phase aérosol est différente dans les deux essais (figure 7). Dans FPT-1, la fraction gazeuse d'iode a augmenté bien après l'isolement de l'enceinte, passant de 0,07 % à une fraction moyenne de 0,14 % de l'inventaire de la grappe. Elle est restée presque constante à 0,14 % durant environ cinq heures. L'augmentation (de 0,07 % à 0,14%) peut être attribuée à la désorption, mesurée expérimentalement, d'iode gazeux des surfaces peintes condensantes. Les mesures sont cohérentes avec un relâchement d'iodures organiques. Dans FPT-0, la fraction gazeuse d'iode a diminué exponentiellement pendant la phase aérosol, passant de 2,5 % à 0,32 % de l'inventaire de la grappe. À la différence des observations faites dans FPT-1, aucune diminution significative de l'activité de l'iode sur les surfaces peintes du condenseur n'a été observée dans FPT-0. Dans les deux essais, avant la phase de lavage, la fraction gazeuse de l'iode est partagée entre l<sub>2</sub> et les iodures organiques avec, dans le cas de FPT-1, une augmentation des fractions d'iodures organiques durant la phase aérosol qui suit l'isolement de l'enceinte.

Pendant la phase de lavage, l'iode se comporte essentiellement dans le puisard comme de la



matière particulaire et se dépose rapidement par gravité sur le fond du puisard, c'est-à-dire que cet iode est transporté dans le puisard et forme une espèce non soluble (par exemple l'Agl particulaire). Après le lavage, la fraction gazeuse d'iode est faible dans les deux essais, représentant 0,063 % de l'inventaire de la grappe dans FPT-0 et 0,094 % de celui-ci dans FPT-1 (figure 7). La spéciation d'iode gazeux est différente dans les deux essais. Dans FPT-1, les mesures sont homogènes et montrent qu'l<sub>2</sub> est l'espèce principale d'iode gazeux au moment du lavage. Après le lavage, la contribution d'I<sub>2</sub> à la fraction gazeuse d'iode diminue et celle des iodures organiques augmente. Dans FPT-0, les données n'étaient pas suffisamment précises pour observer un quelconque effet du lavage sur la fraction gazeuse d'iode; cependant, les iodures organiques dominent la fraction d'iode gazeux.

Dans les deux essais, les mesures montrent que les iodures organiques sont les espèces gazeuses d'iode majoritaires sur le long terme. Les résultats indiquent un faible transfert d'iode gazeux depuis le puisard vers l'atmosphère suite au piégeage de l'iode par l'Ag et à l'inhibition de la formation d'iode volatil par radiolyse.

Les mesures montrent que les iodures organiques sont les espèces gazeuses d'iode majoritaires sur le long terme.

51

Caisson de télémanipulation. Installation Phébus.



#### Conclusion

Plusieurs des phénomènes importants qui peuvent se produire dans un REP pendant un accident grave ont été reproduits dans les essais FPT-0 et FPT-1 : l'éclatement des gaines, l'oxydation du zircaloy et la production d'hydrogène, la rupture du crayon de commande et la relocalisation des matériaux absorbants. la délocalisation des crayons combustibles, l'accumulation d'UO<sub>2</sub> et la formation d'un bain fondu, le relâchement des produits de fission et des aérosols, le transport et les dépôts dans le circuit primaire et dans l'enceinte de confinement. Les informations obtenues à partir des résultats de ces essais peuvent être utilisées pour aborder plusieurs questions importantes relatives au terme source en cas d'accident grave.

Le processus de rupture du crayon de commande et la formation précoce d'une accumulation de matériaux métalliques dans la partie inférieure de la grappe (au-dessous du bain d'UO<sub>2</sub>) ont été clairement identifiés. La mesure de la masse totale d'hydrogène produite dans les essais FPT-0 et FPT-1 fournit des informations intéressantes sur la cinétique de l'oxydation du zircaloy. La température relativement basse à laquelle s'est produite la délocalisation des crayons combustibles est un point important qui doit être considéré dans l'analyse des accidents graves d'un REP. Les deux expériences ont démontré que la relocalisation des matériaux et leur accumulation entraînent la formation et la propagation progressive d'un bain fondu riche en UO<sub>2</sub> dans la partie inférieure de la grappe. Les examens PIE ont clairement démontré que, dans les mêmes conditions, le combustible irradié était plus dégradé que le combustible non irradié.

En ce qui concerne les produits de fission, les points qui devraient être considérés dans les analyses d'accidents graves d'un REP sont :

- les phases principales de transport de matière dans le circuit, qui sont corrélées avec des événements de dégradation de la grappe (phases d'oxydation du Zr, délocalisation des matériaux);
- le dépôt dans le circuit, qui s'est produit essentiellement dans la branche chaude du circuit (dans les sections au-dessus du combustible dégradé et à l'entrée du générateur de vapeur);
- une quantité significative d'iode gazeux injectée dans l'enceinte pendant les phases d'oxydation du Zr;
- les aérosols ayant transporté dans le circuit les PF, qui étaient des aérosols multicomposants dont la masse est dominée par des matériaux provenant de la barre de commande et des structures de la grappe;
- à long terme, la fraction gazeuse d'iode dans le modèle d'enceinte de confinement, dominée par des iodures organiques;
- la chimie du puisard de l'enceinte, qui a été marquée par le piégeage de l'iode par l'argent (provenant de la dégradation de la barre de commande AIC), empêchant la formation d'iode volatil par radiolyse.

L'essai FPT-2 vise à étudier le même type de phénomène que l'essai FPT-1 pour des conditions appauvries en vapeur dans le circuit et des conditions différentes à l'intérieur de l'enceinte impactant sur la volatilité de l'iode. Le dernier essai du programme, FPT-3, étudiera l'effet du matériau absorbant (B<sub>4</sub>C) du crayon de commande sur la dégradation de la grappe, ainsi que l'effet de ses produits d'oxydation sur le comportement des produits de fission.

La relocalisation des matériaux et leur accumulation entraînent la formation et la propagation progressive d'un bain fondu riche en UO<sub>2</sub> dans la partie inférieure de la grappe.