Mesure de la conductivité thermique à haute température de l'UO_2 solide et liquide par thermographie infrarouge

B. Remy[1],* A. Degiovanni[1] et D. Staicu[2]

1) Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée (LEMTA) - UMR CNRS 7563, INPL-ENSEM, UHP Nancy

2) European Commission, Joint Research Centre Institute for Transuranium Elements (ITU), Karlsruhe, Germany

Institute for Transuranium Elements

CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

Benjamin.remy@ensem.inpl-nancy.fr

Motivation

- La conductivité thermique du dioxide d'Uranium liquide est une grandeur mal connue

- Dans la littérature, nous trouvons des valeurs comprises entre

1 et 11 $W.m^{-1}.K^{-1}$.

- **Ces grandes différences s'expliquent principalement par la difficulté des mesures due à la nature particulière du matériau et à sa température de fusion élevée : T_m = 3120K.**

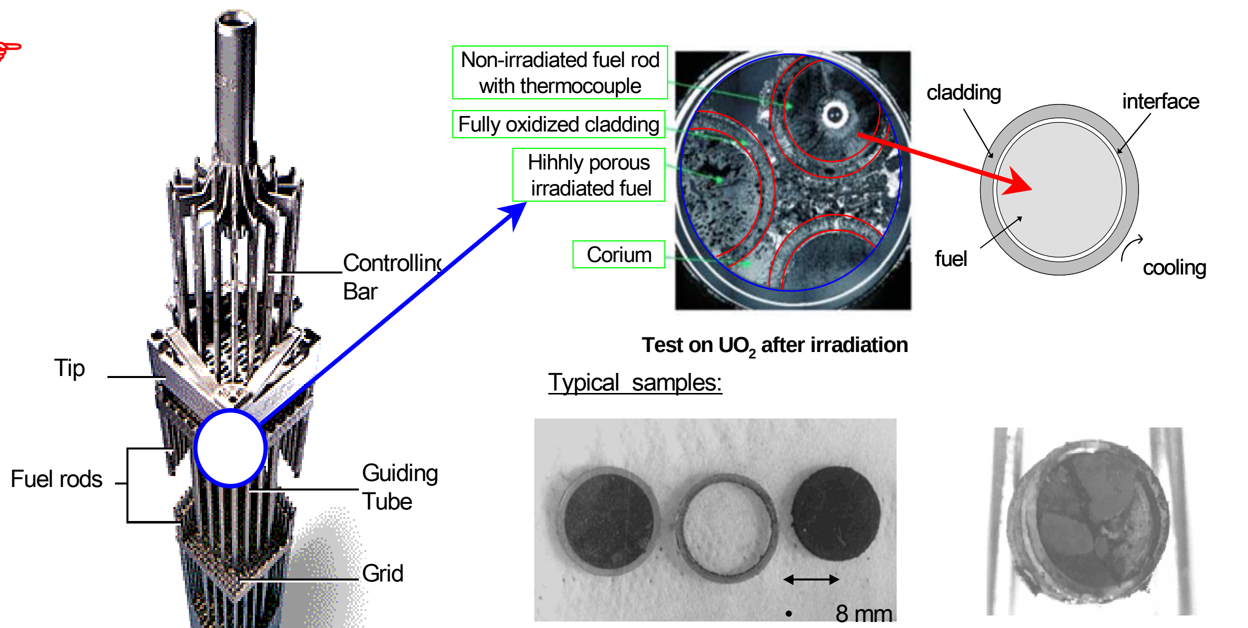
Echantillon nucléaire type

☞ La connaissance de cette propriété est importante pour améliorer:

- l'interprétation des mesures in-situ
- la simulation des réacteurs nucléaires dans des conditions extrêmes

→Il est important de développer des techniques de mesure pour caractériser le matériau dans une configuration aussi proche que possible des conditions réelles de fonctionnement. C'est un point important en génie nucléaire.

☞



Test on UO_2 after irradiation

Typical samples:

Sample successfully separated from cladding

Sample broken during separation from cladding *(usual)*

→ Un autre point important lorsque l'on travaille sur des matériaux irradiés est de réduire la durée et le nombre d'expériences

C'est le but recherché dans les

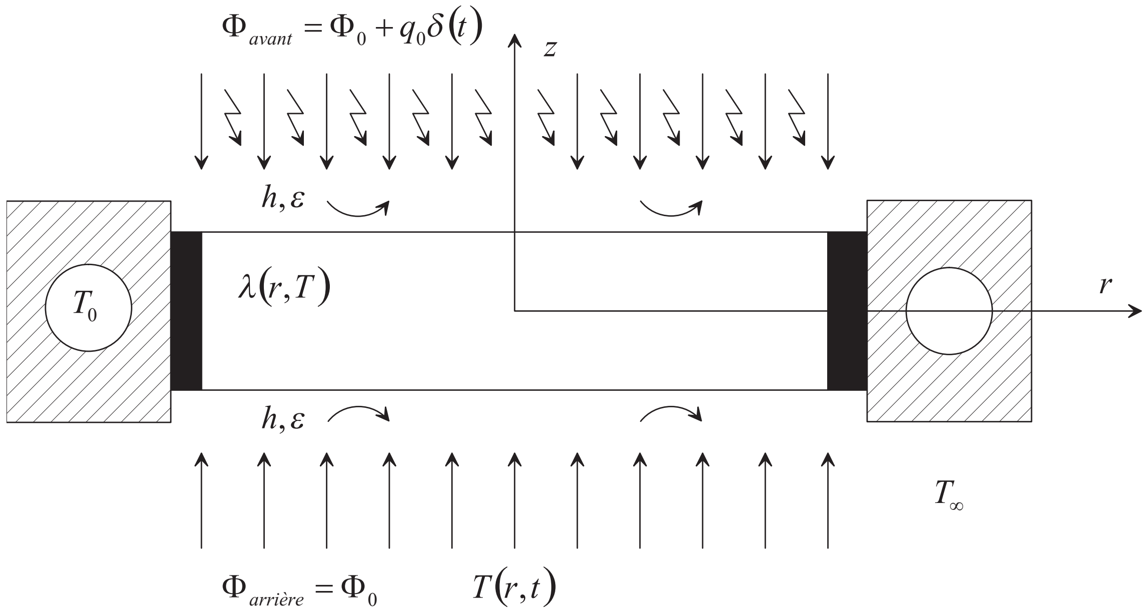
3 dispositifs de mesure mis au point à l'I.T.U

Mesure de la conductivité du solide – *Polaris I*

→ **Le principe de la mesure de conductivité thermique en fonction de la température repose sur une expérience Flash réalisée sous gradient de température**, ce qui permet de **réduire le nombre d'expériences**.

☞ Principe de l'expérience :

$e = 2\,mm$ $R = 4\,mm$



Les thermogrammes mesurés par thermographie infrarouge en différents points de la face arrière face-arrière permettent de remonter par méthode inverse à la diffusivité thermique en fonction de la température

Mesure de la conductivité du solide - Polaris I

☞ Modèle théorique:

Equations à résoudre :

- $$\frac{\partial}{\partial z}\left[\lambda(T)\frac{\partial T}{\partial z}\right]+\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left[r\lambda(T)\frac{\partial T}{\partial r}\right]=\rho C_p\frac{\partial T}{\partial t}$$
- $z=0$ $\quad \lambda(T)\frac{\partial T}{\partial z}=h(T-T_{ext})+\varepsilon\sigma\left(T^4-T_{ext}^4\right)-p_0-\varphi_0\delta(0)$
- $z=e$ $\quad -\lambda(T)\frac{\partial T}{\partial z}=h(T-T_{ext})+\varepsilon\sigma\left(T^4-T_{ext}^4\right)-p_0$
- $r=0$ $\quad \frac{\partial T}{\partial r}=0$
- $r=R$ $\quad T=T_0$
- $t=0$ $\quad T=T_p(r,z)$

L'expérience peut être modélisé par la somme de 2 sous-problèmes:

- un problème permanent avant le *Flash* $\quad \boxed{T_p(r,z)}$

et

- un problème transitoire après le *Flash*. $\quad \boxed{T_t(r,z,t)}$

Mesure de la conductivité du solide - **Polaris I**

→ Seul le problème transitoire est important : $\boxed{T_t(r,z,t) = T(r,z,t) - T_p(r,z)}$

- En méthode *Flash* , l' **élévation de température due au Flash** est faible devant la température initiale. Il est aussi possible de linéariser les **pertes radiatives**.

-Pour les mêmes raisons et puisque le **gradient de température est faible dans l'épaisseur du matériau**, on peut écrire que la **conductivité thermique ne dépend que de *r*** :

$$\boxed{\lambda(T) \simeq \lambda(T_p(r,z)) = \lambda(r)}$$

☞ Modèle théorique :

- $$\lambda(r)\frac{\partial^2 T_t}{\partial z^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\lambda(r)\frac{\partial T_t}{\partial r}\right) = \rho C_p \frac{\partial T_t}{\partial t}$$
- $z = 0 \qquad \lambda(r)\dfrac{\partial T_t}{\partial z} = H(r)T_t - \varphi_0\delta(0) \qquad \left[H(r) = h + 4\varepsilon\sigma T_p^3(r,z)\right]$
- $z = e \qquad -\lambda(r)\dfrac{\partial T_t}{\partial z} = H(r)T_t$
- $r = 0 \qquad \dfrac{\partial T_t}{\partial r} = 0$
- $r = R \qquad T_t = 0 \qquad \left[T_p(r = R, z) = T_0\right]$
- $t = 0 \qquad T_t = 0$

→Cependant, le problème reste délicat à résoudre. En effet, si l'équation différentielle devient linéaire en température, elle reste 2D et à coefficients non constants.

La solution de ce problème peut être obtenue en utilisant des **transformations intégrales en temps** *t* (Laplace) et en **espace** *z*.

☞ Solution Analytique:

Transformation intégrale en *z* :

$$\psi(\alpha_n, z) = \cos\alpha_n z + \frac{H}{\lambda\alpha_n}\sin\alpha_n z$$

- Avec α_n racines de l'équation transcendante :

$$\left(1-\frac{H^2}{\lambda^2\alpha_n^{\ 2}}\right).\sin(\alpha_n e) = \frac{2H}{\lambda\alpha_n}\cos(\alpha_n e)$$

- Nome de la transformation intégrale :

$$N_n = \frac{e}{2}\left[1+\left(\frac{H}{\lambda\alpha_n}\right)^2 + \frac{2}{\alpha_n e}\frac{H}{\lambda\alpha_n}\cos^2\alpha_n e\right]$$

- La forme de la conductivité thermique doit être connue : $\lambda(r)$

  Une bonne approximation est donnée par :

$$\frac{\lambda(r^*)}{\lambda_0} = 1 + br^{*2} + cr^{*4}$$

$$\begin{cases} r^* = r/R \\ \lambda_0 = \lambda \text{ in } r = 0 \end{cases}$$

Solution Analytique :

Transformée de la température :

$$\theta(r,\alpha_n,p)=\int_0^{\infty}\int_0^{e} T_t(r,z,t)\psi_n(\alpha_n,z)\exp(-pt)dzdt$$

- $$\left(1+br^{*2}+cr^{*4}\right)\left(\frac{d^2\theta}{dr^{*2}}+\frac{1}{r^*}\frac{d\theta}{dr^*}\right)+\left(2br^*+4cr^{*3}\right)\frac{d\theta}{dr^*}-\left(d+er^{*2}+fr^{*4}\right)\theta=K$$

$$\begin{cases} r^*=0 & \dfrac{d\theta}{dr^*}=0 \\ r^*=1 & \theta=0 \end{cases}$$

- Solution en série entière : $$\theta=\sum_{i=0}^{\infty}a_i r^{*i}$$

- On trouve par identification : $$\theta(r^*,\alpha_n,p)=\frac{\varphi_0R^2}{\lambda_0}\left[\frac{\sum_{i=0}^{\infty}A_i r^{*i}.\sum_{i=0}^{\infty}B_i-\sum_{i=0}^{\infty}A_i.\sum_{i=0}^{\infty}B_i r^{*i}}{\sum_{i=0}^{\infty}A_i}\right]$$

$A_0=1,\quad A_1=0,\quad A_2=\frac{d}{4},\quad A_3=0,\quad A_4=\frac{1}{16}e+\frac{1}{64}d^2-\frac{1}{8}bd,\quad A_5=0$

$B_0=0,\quad B_1=0,\quad B_2=\frac{1}{4},\quad B_3=0,\quad B_4=\frac{1}{64}d-\frac{1}{8}b,\quad B_5=0$

Relations de récurrence : $(B_i=\text{idem } A_i)$

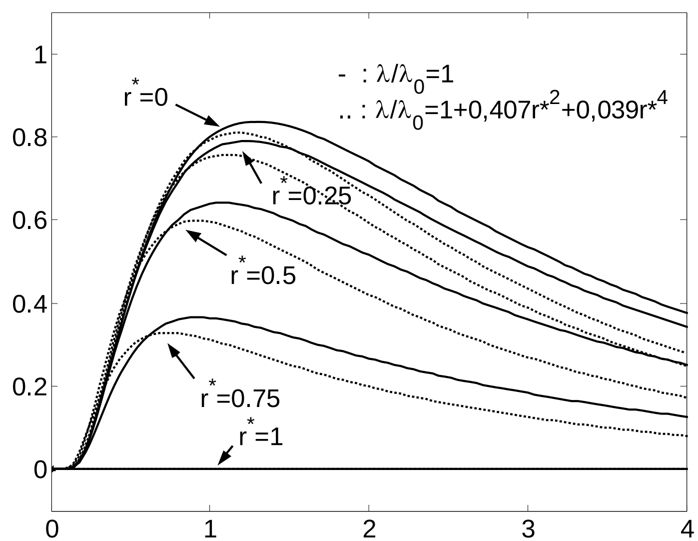
$$A_i=A_{i-2}\left[\frac{1}{i^2}d-\frac{i-2}{i}b\right]+A_{i-4}\left[\frac{1}{i^2}e-\frac{i-4}{i}c\right]+A_{i-6}\frac{1}{i^2}f$$

Transformation **inverse en** z :

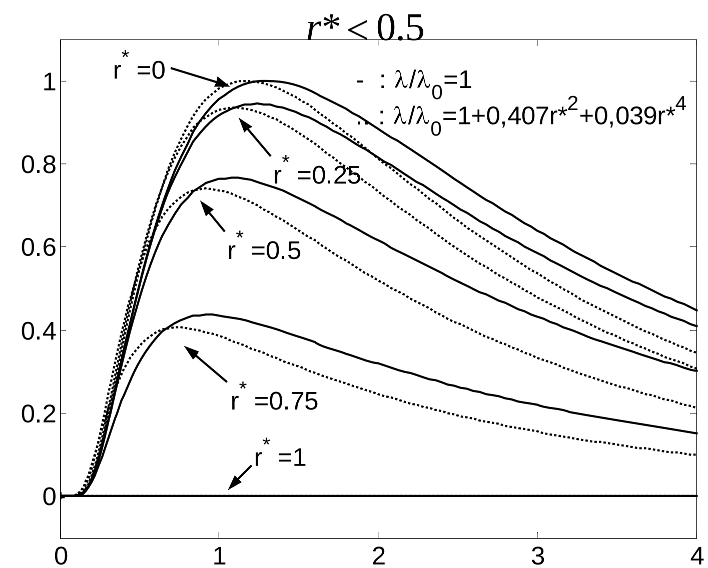
$$\overline{T}(r^*,z,p)=\sum_{n=0}^{\infty}\frac{\psi_n(\alpha_n,z)\theta_n(r^*,\alpha_n,p)}{N_n}$$

- **Inversion Laplace numérique** : $\overline{T}(r^*,z,p)$ $\quad T_t(r^*,z,t)$

☞ Résultats de simulation :



(a) *Thermograms*



(b) *Reduced thermograms*

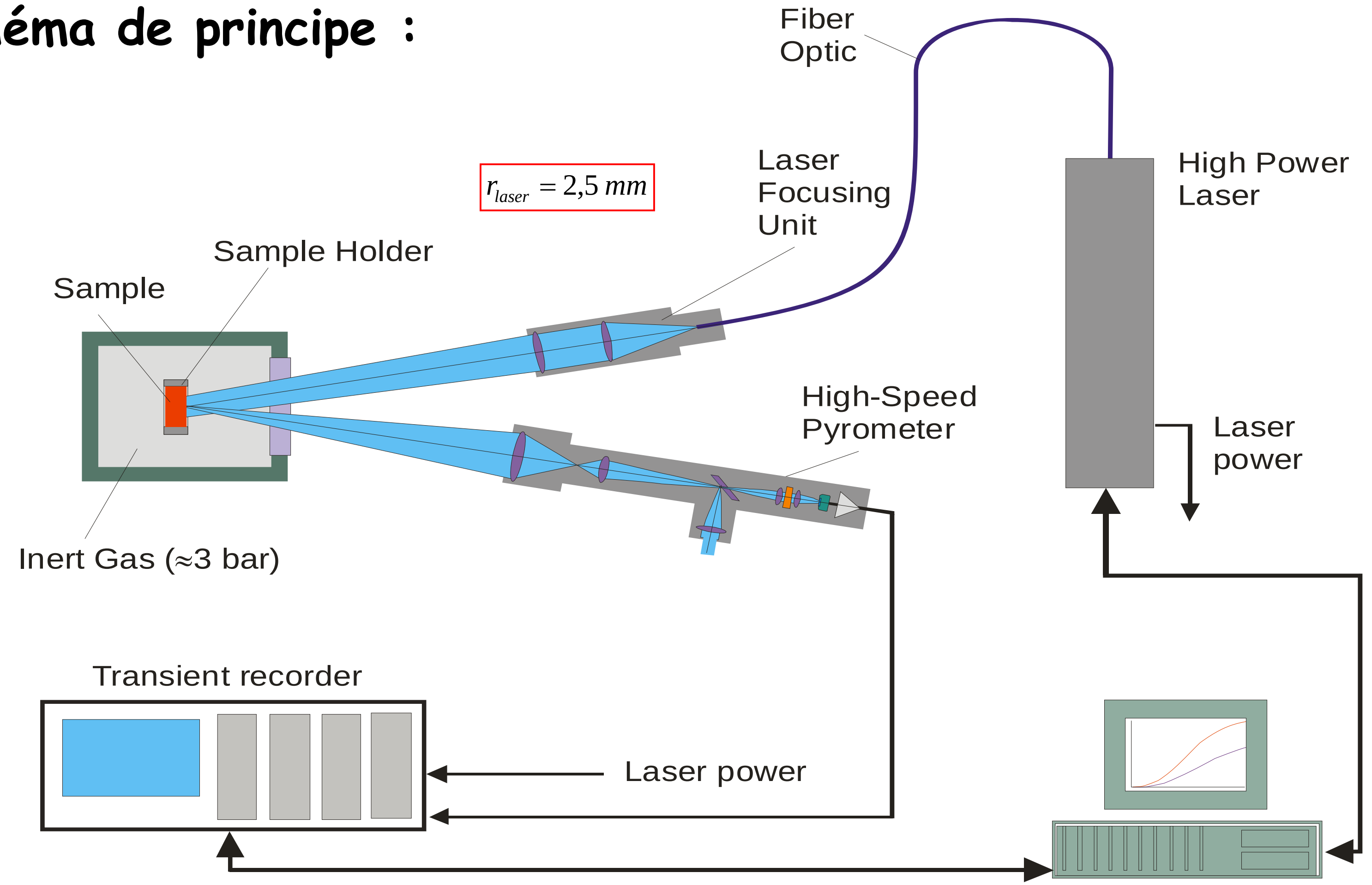
Dans le problème inverse, les paramètres à identifier sont : H, $\rho C_p/\lambda_0$, $\varphi_0 R^2/\lambda_0$, b et c. On s'affranchit de l'énergie absorbée en normalisant chaque thermogramme par rapport au max du themogramme central

Thermogrammes sont sensibles aux variations de la conductivité thermique

Mesure de la conductivité du liquide – Polaris II

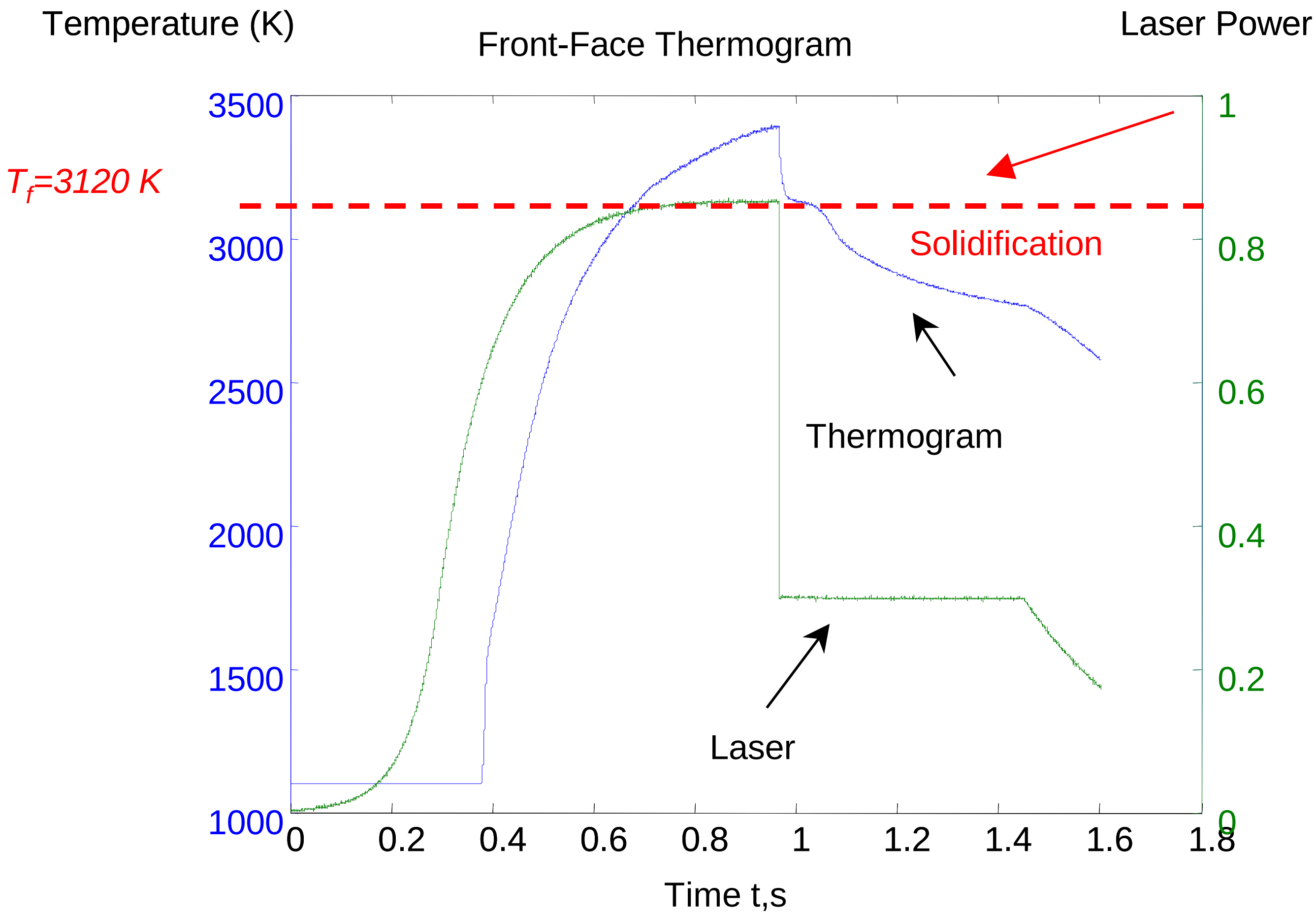
→ **Méthode en régime transitoire** : Elle est basée sur un dispositif initialement développé à l' Institute TransUranium (I.T.U) pour la mesure du point de fusion de l'UO_2.

☞ **Schéma de principe :**



Mesure en régime transitoire - Polaris II

☞ **Excitation Laser et Mesure en face-avant:**

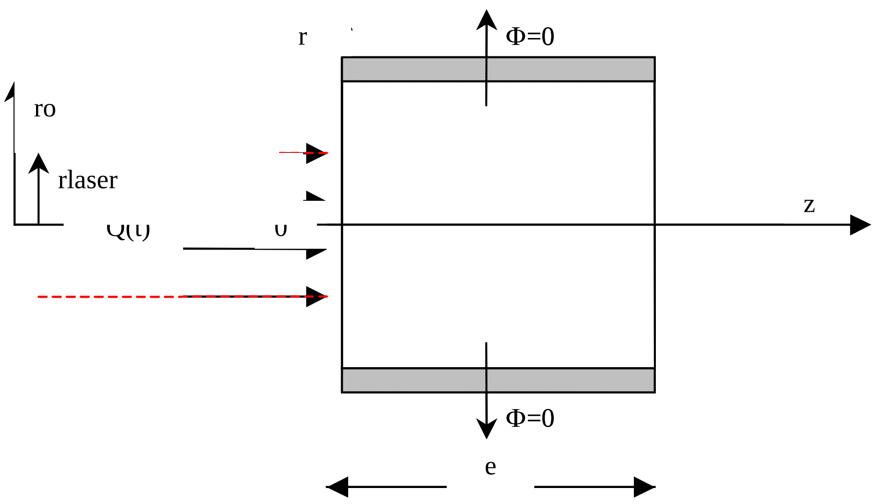


→ La phase de chauffage, fonction de propriétés du liquide, est utilisée pour la mesure de la conductivité thermique du liquide.

Mesure en régime transitoire - Polaris II

→ Méthode Enthalpique pour la résolution : $H_i = \int_{T_0}^{T} C_{p_i}(T')\,dT'$

☞ Modèle théorique :



Conditions à l'interface solide/Liquide :

- $\rho_s(T_s)h_{ls}\dfrac{\partial X_f(t)}{\partial t} = \lambda_s(T_s)\overrightarrow{grad}(T_s).\vec{n}\Big|_{s=X_f(t)} - \lambda_l(T_l)\overrightarrow{grad}(T_l).\vec{n}\Big|_{s=X_f(t)}$

- $T_s(s = X_f(t)) = T_l(s = X_f(t)) = T_f$

Le front de fusion est 2D car l'excitation Laser est réduite (r_{Laser})

Mesure en régime transitoire - Polaris II

☞ Equations :

- $$\boxed{\rho_i \frac{\partial H_i}{\partial t} = div\left(\lambda_i(T_i).\overrightarrow{grad}(T_i)\right)}$$ $(i = l \text{ ou } s)$

- $r = 0$ $\quad \left.\frac{\partial T}{\partial r}\right|_{r=0} = 0$ "axial-symmetry"

- $r = r_o$ $\quad \left.\frac{\partial T}{\partial r}\right|_{r=r_0} = 0$

- $z = 0$ $\quad -\lambda_i.\left.\frac{\partial T_i}{\partial z}\right|_{z=0} = \alpha P_{laser} H(r_{laser}) - \varepsilon\sigma\left(T_i^4 - T_{ext}^{\ 4}\right) - \frac{dW}{dt}.h_{lv}$

$$H(r_{laser}) = \begin{cases} 1 \text{ if } \ r \leq r_{laser} \\ 0 \text{ if } \ r > r_{laser} \end{cases}$$

- $z = e$ $\quad -\lambda_i.\left.\frac{\partial T_i}{\partial z}\right|_{z=e} = \varepsilon\sigma\left(T_i^4 - T_{ext}^{\ 4}\right)$

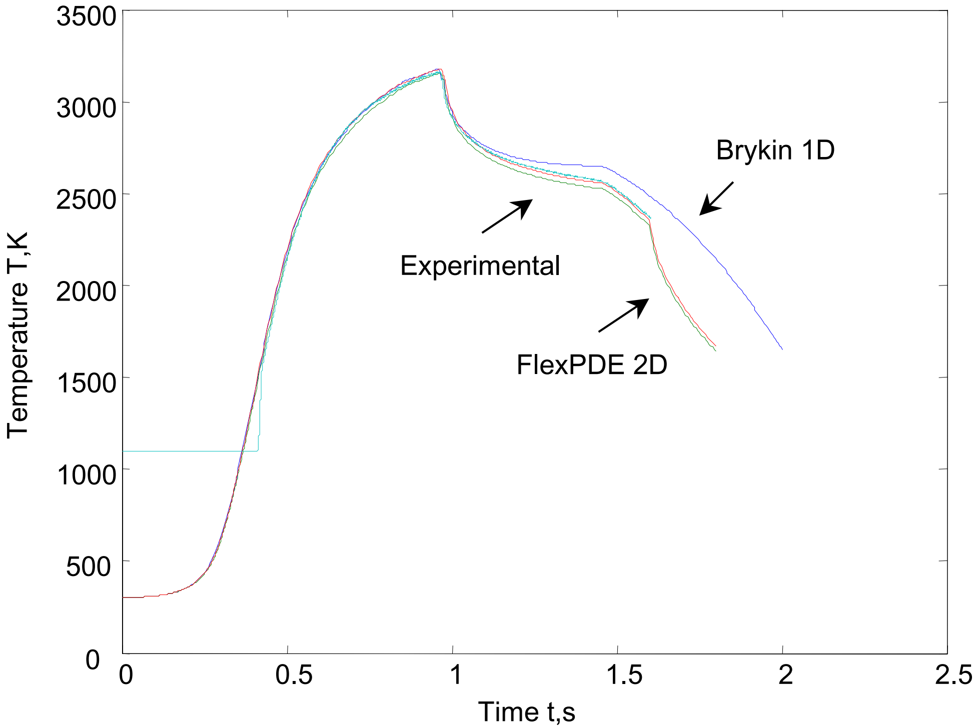
- $t = 0$ $\quad T = T(x, r, t = 0) = T_{init} < T_f$

- Le problème à résoudre est difficile car il est 2D et non-linéaire (thermodependance des propriétés thermophysiques)

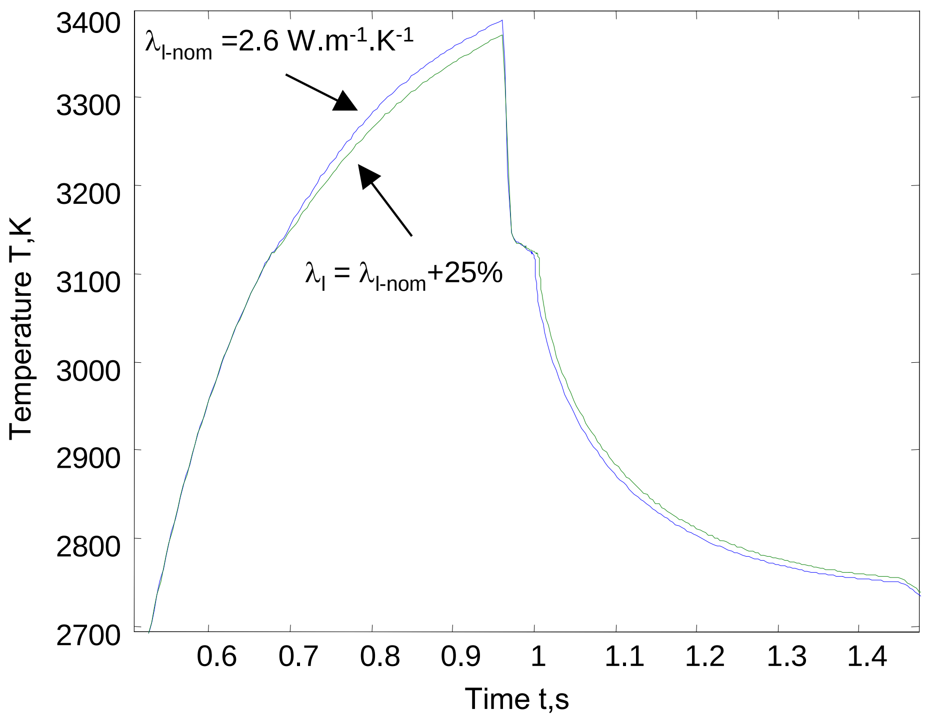
- Seule un solution numérique peut être envisagée

Mesure en régime transitoire - Polaris II

☞ Solution numérique :



☞ Etude de sensibilité :



→ La montée en température dépend de la conductivité du liquide.

Mise en place d'une méthode inverse

→ L'étude de sensibilité montre que:

-La température de surface est peu sensible à h_l.
-Le paramètre le plus sensible est ρC_{pl}, puis λ_l.

Mesure en régime permanent - Polaris II

→ La méthode transitoire n'est pas adaptée à l'estimation de paramètres par technique inverse car elle est très coûteuse en temps (méthode enthalpique en régime transitoire). C'est pourquoi, nous étudions la possibilité de faire une expérience similaire en régime permanent.

L'avantage de cette expérience est qu'elle ne dépend pas de l'enthalpie de changement de phase du matériau, de la densité et de la capacité calorifique du solide et du liquide

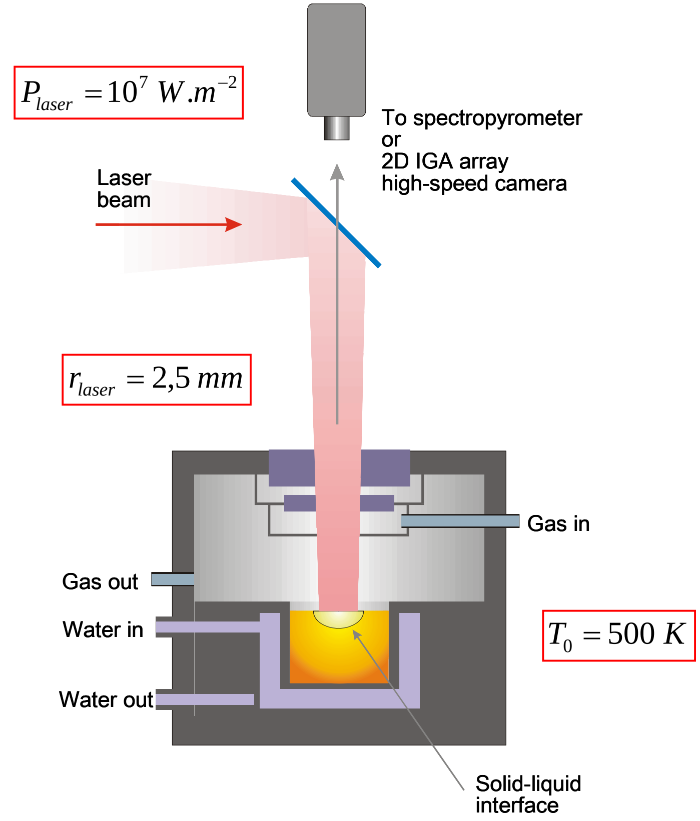
☞ Schéma de principe :

- Anneau de Garde + Chauffage par un Laser continu (200W) permettant de faire fondre une quantité suffisante de matériau

- Refroidissement de la surface latérale (auto-creuset)

- Le profil de température en face-avant est mesuré par une caméra infrarouge.

- La conductivité du liquide est obtenue par méthode inverse



Mesure en régime permanent - Polaris II

☞ Modèle direct :

→ Equations à résoudre sont les mêmes que pour la méthode transitoire

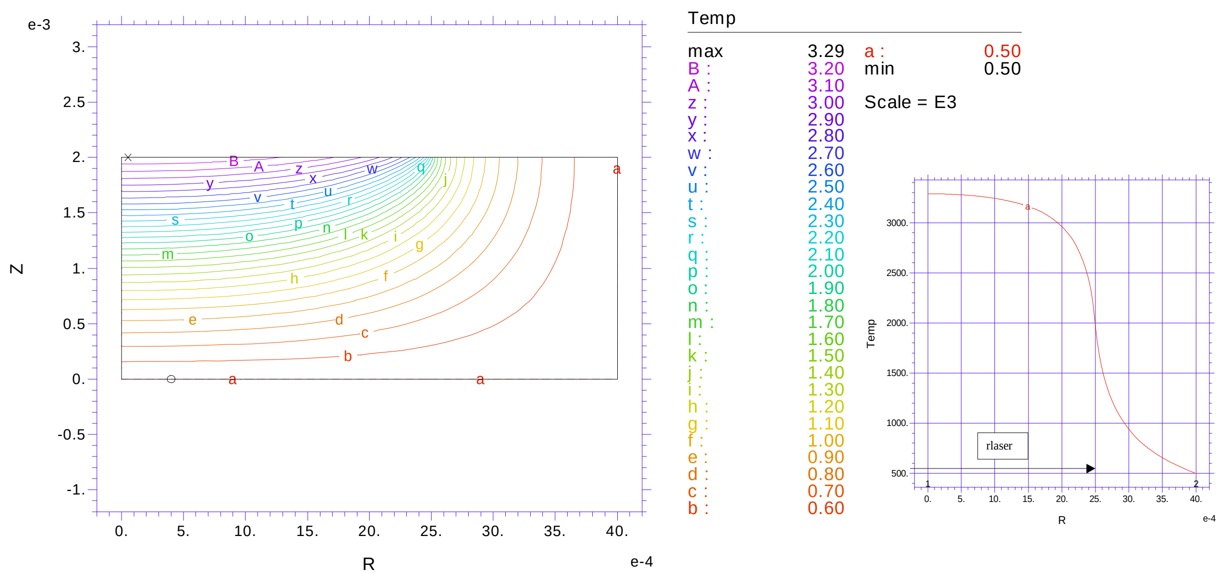
Conditions à l'interface Solide-Liquide :

- $$\cancel{\rho_s(T_s) h_{ls} \frac{\partial X_f(t)}{\partial t}} = \lambda_s(T_s)\,\overrightarrow{grad}(T_s).\vec{n}\Big|_{s=X_f(t)} - \lambda_l(T_l)\,\overrightarrow{grad}(T_l).\vec{n}\Big|_{s=X_f(t)}$$
- $$T_s\big(s = X_f(t)\big) = T_l\big(s = X_f(t)\big) = T_f$$

- $z = 0$ $$-\lambda_i.\frac{\partial T_i}{\partial z}\Big|_{z=0} = \alpha P_{laser} H(r_{laser}) - \varepsilon\sigma\left(T_i^{\,4} - T_{ext}^{\,4}\right) - \frac{dW}{dt}.h_{lv}$$

$$H(r_{laser}) = \begin{cases} 1 \text{ if } & r \le r_{laser} \\ 0 \text{ if } & r > r_{laser} \end{cases}$$

- $z = e$ $$-\lambda_i.\frac{\partial T_i}{\partial z}\Big|_{z=e} = \varepsilon\sigma\left(T_i^{\,4} - T_{ext}^{\,4}\right)$$



- $r = r_o$ $\quad T = T_0 < T_f$
- $z = e$ $\quad T = T_0 < T_f$

$$\boxed{\lambda(T) = \begin{cases} \lambda_s \text{ if } & T \le T_f \\ \lambda_l \text{ if } & T > T_f \end{cases}}$$

$$\lambda_l(T) = a \times (T - T_f) + b$$

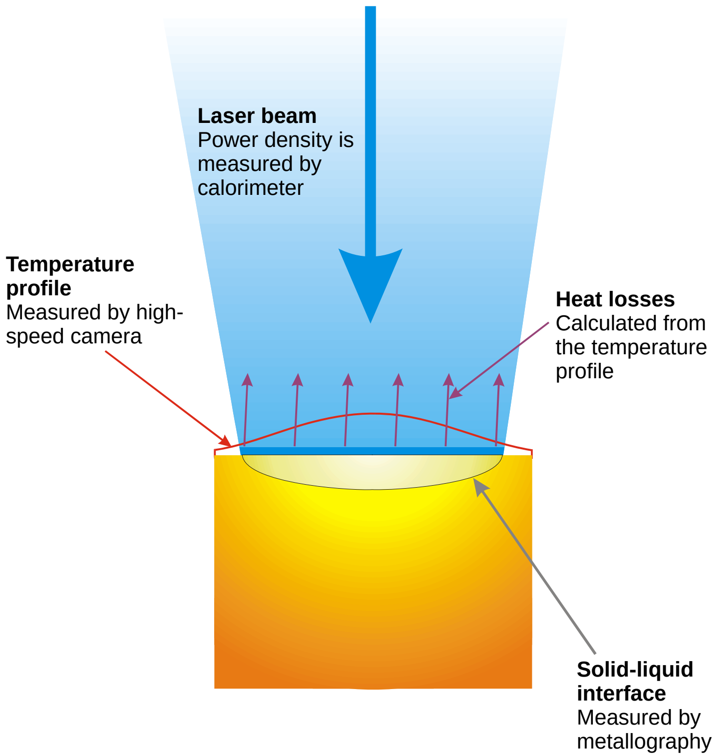
– une constante c

On peut remarquer que les gradients de température sont faibles dans le liquide : $T > T_m = 3120\ K$

Mesure en régime permanent - Polaris II

→ Pour obtenir la conductivité du liquide à partir de cette expérience, nous proposons 2 méthodes d'estimation différentes. Chacune d'elle repose sur une méthode de type OLS (Algorythme de Levenberg-Marquardt's). Le programme d'estimation est programmé sous Matlab® et utilise un modèle numérique sous FlexPDE® comme modèle théorique.

☞ Principe des estimations :



Dans ces 2 méthodes, nous supposons connus :

- conductivité du solide (correlation de Fink).
- profil de température est mesuré en face-avant.

Mais aussi :

- **puissance absorbée en face-avant et émissivité du matériau** (**Méthode ①**),
- Ou position de l'interface liquide/solide, **qui peut être mesurée par Metallographie après expérience** (**Méthode ②**).

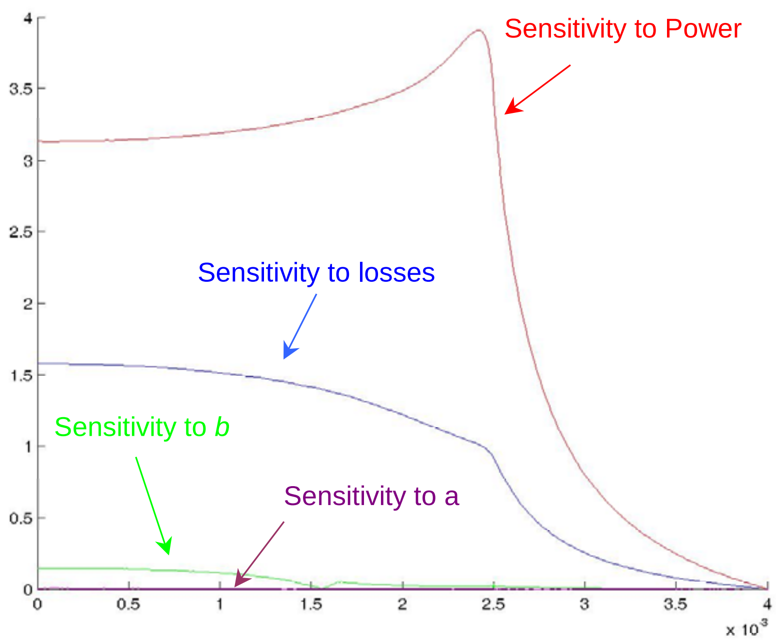
Dans chaque méthode, nous cherchons à remonter aux coefficients a et b.

Mesure en régime permanent - Polaris II

→ **Méthode ①** consiste à remonter à la conductivité du liquide en comparant le profil de température mesuré et celui donné par la modèle numérique. L'avantage de cette méthode est que la connaissance de la position de l'interface n'est pas requise.

☞ Methode ① :

Etude de sensibilité (Influence des paramètres sur le profil de température) : $X_i^* = \beta_i \, \partial T(\beta)/\partial \beta$



- Profil peu sensible au paramètre *a* (facteur 30 comparé à *b*), -> Mesure de la conductivité thermique proche du Liquidus (Température de la zone liquide proche de la température de fusion).
- Forte sensibilité du profil de température à l'énergie absorbée et aux pertes radiatives.

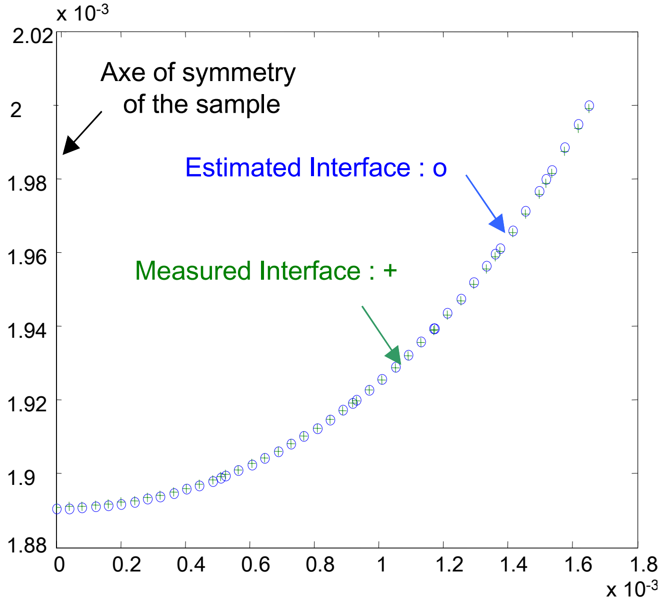
Une erreur de 10% sur la puissance absorbée peut entraîner une erreur de 100% sur la conductivité du liquide.

Cette méthode requiert une parfaite maîtrise et connaissance de l'énergie absorbée et des pertes

Mesure en régime permanent - Polaris II

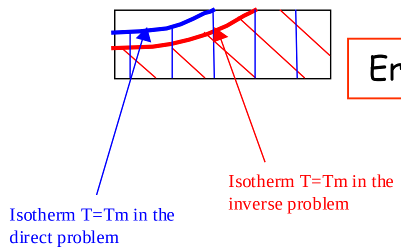
→ **Méthode** ② consiste à modifier la condition aux limites du modèle direct en prenant le profil de température mesuré comme nouvelle CL. Dans cette méthode, la fonction de coût est construite à partir de la position de l'interface solide-liquide;

☞ **Methode ② :** On peu chercher à minimiser l'écart entre les interfaces mesurée et calculée (**fonction de coût 1**), ou les écarts entre le profil de température obtenu par le modèle au niveau de l'interface et la température de fusion (**fonction de coût 2**).



Comparison between measured and estimated interfaces

Cost function - 1



Erreur de 1%

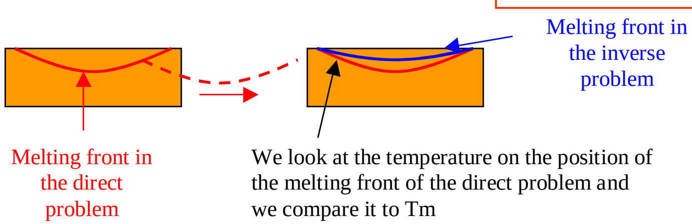
"Méthode performante"

λ_l =3 $W.m^{-1}.K^{-1}$ (Direct) - λ_l =**2,9786** $\mathbf{W.m^{-1}.K^{-1}}$ **(Est.)**

λ_l =0,012 $(T-T_f)$+3 $W.m^{-1}.K^{-1}$ - λ_l =**3,0676** $\mathbf{W.m^{-1}.K^{-1}}$

Cost function – 2

Erreur de 10%



λ_l =3 $W.m^{-1}.K^{-1}$ (Direct) - λ_l =**2,72** $\mathbf{W.m^{-1}.K^{-1}}$ **(Est.)**

→ Une erreur de 10 % sur la position du front entraine une erreur de 15% sur la conductivité thermique

La principale difficulté de cette méthode est que la position du front de fusion doit être connue