

PREMIER MINISTRE
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

**REALISATION D'UN APPAREIL DE MESURE
DE LA CONDUCTIBILITE THERMIQUE
DU GRAPHITE IRRADIE OU NON IRRADIE**

par

M. BOCQUET , G. MICAUD

Rapport C.E.A. n°2242

CEA 2242 - BOCQUET M. et MICAUD G.

REALISATION D'UN APPAREIL DE MESURE DE LA CONDUCTIBILITE
THERMIQUE DU GRAPHITE IRRADIE OU NON IRRADIE (1962)

Sommaire. - Un appareil de mesure du coefficient de conductibilité thermique K du graphite irradié ou non irradié a été réalisé. Utilisant le principe du transfert de chaleur, il permet de mesurer K au voisinage de la température ambiante avec une précision de 6 pour cent environ.

L'échantillon de graphite étudié est placé sous vide entre une source chaude et une source froide qui créent en régime permanent un gradient de température $\frac{\Delta \Theta}{\Delta x}$.

La quantité de chaleur transférée Q est déduite de la puissance électrique dissipée dans la source chaude en déduisant les pertes thermiques. Le coefficient de conductibilité thermique est défini par :

$$K = \frac{Q}{S} \cdot \frac{\Delta x}{\Delta \Theta}$$

S désignant la section de l'échantillon. Des études systématiques ont permis de déterminer pour différents graphites non irradiés les valeurs moyennes des coefficients de conductibilité thermique. Ces études ont ./.

CEA 2242 - BOCQUET M. et MICAUD G.

DEVELOPMENT OF AN APPARATUS FOR MEASURING THE THERMAL
CONDUCTIVITY OF IRRADIATED OR NON-IRRADIATED GRAPHITE (1962)

Summary. - An apparatus has been developed for measuring the thermal conductivity coefficient K of irradiated or non-irradiated graphite. Using the heat transfer principle it makes possible the measurement of K at around room temperature with an accuracy of about 6 per cent.

The sample of graphite studied is placed in a vacuum between a hot and a cold source which create a temperature gradient $\frac{\Delta \Theta}{\Delta x}$ in the steady state.

The amount of heat transferred, Q, is deduced from the electrical power dissipated at the hot source, after allowing for heat losses. The thermal conductivity coefficient is defined as :

$$K = \frac{Q}{S} \cdot \frac{\Delta x}{\Delta \Theta}$$

S being the cross-section of the sample. Systematic studies have made it possible to determine the mean values of the thermal conductivity

- Rapport C.E.A. n° 2242 -

Service de Physico Chimie Appliquée
Section de Physique de matériaux nucléaires

**REALISATION D'UN APPAREIL DE MESURE DE LA CONDUCTIBILITE THERMIQUE
DU GRAPHITE IRRADIE OU NON IRRADIE**

par

M. BOCQUET, G. MICAUD

REALISATION D'UN APPAREIL DE MESURE DE LA CONDUCTIBILITE THERMIQUE DU GRAPHITE IRRADIE OU NON IRRADIE

INTRODUCTION

Diverses méthodes peuvent être employées pour mesurer le coefficient de conductibilité thermique du graphite. Parmi celles-ci, deux ont déjà été employées au C.E.A. : celle du transfert de chaleur et celle de KOHLRAUSCH [1][2] mais elles nécessitent un appareillage qui impose des dimensions assez strictes aux échantillons. Ainsi, pour les appareils réalisés, la méthode du transfert de chaleur utilise des éprouvettes de 7 mm de diamètre et de 50 mm de longueur tandis que pour la méthode de KOHLRAUSCH, on emploie des éprouvettes de 15 mm de diamètre et de 100 mm de longueur. Cette restriction exclut donc leur utilisation pour des mesures sur des échantillons de longueur et de dimensions variables. Or, il était intéressant de connaître l'état du graphite composant les empilements de G. 1 et G. 2 et pour cela, de pouvoir étudier les modifications subies par la conductibilité thermique sous l'effet de l'irradiation. Les éprouvettes utilisables pour cette étude, extraites des empilements par carottage, sont des cylindres de diamètre 15 mm et de longueur 15 à 20 mm. On a été conduit à étudier un nouvel appareil de mesure de la conductibilité thermique apte à l'étude de ces échantillons mais dont l'emploi ne devait pas être limitatif. En effet, de nouveaux produits comme les carbones pyrolytiques de forme et de dimensions variables devaient être également étudiés avec cet appareil.

Ainsi, l'appareil de mesure du coefficient de conductibilité thermique décrit dans la présente note a été réalisé de manière à présenter une grande souplesse d'utilisation.

A - PRINCIPE DE LA METHODE

I - Généralités sur la méthode du "transfert de chaleur"

Le coefficient de conductibilité thermique K est défini par le rapport d'un flux de chaleur dans l'unité de temps et d'un gradient de température. Plus précisément si dans un échantillon de section $S \text{ cm}^2$ on fait passer en une seconde une quantité de chaleur Q pour établir en régime permanent un gradient de température $\frac{\Delta \theta}{\Delta x}$ le long de l'échantillon, le coefficient de conductibilité thermique K est alors défini par la formule :

$$Q = K \frac{\Delta \theta}{\Delta x} S \quad (1)$$

Si Q est exprimé en calories, Θ en degrés C, x en centimètres et S en centimètres carrés, alors K est donné en cal. cm⁻² cm. s⁻¹ °C⁻¹ ou cal. cm⁻¹ s⁻¹ °C⁻¹ "u.c.g.s." Finalement, la mesure de K se ramène à la détermination simultanée du gradient de température et du flux de chaleur.

a) L'évaluation du gradient de température le long d'un échantillon consiste à mesurer les températures Θ_3 et Θ_2 en deux points d'entraxe bien déterminé : x .

$$\text{On a alors } \frac{\Delta \Theta}{\Delta x} = \frac{\Theta_3 - \Theta_2}{x} .$$

Pour créer ce gradient de température, on dispose l'échantillon à mesurer entre une source chaude et une source froide et on maintient en régime permanent une différence de température $\Delta \Theta$ entre les faces des deux sources. La source de chaleur est constituée par une résistance électrique R (ohms) dans laquelle on fait passer un courant I . La source froide est une pièce refroidie par une circulation d'eau.

b) En ce qui concerne la détermination du flux de chaleur, deux solutions peuvent être utilisées :

1° - La première consiste à interposer un fluxmètre, corps constitué d'un matériau de conductibilité thermique K_0 connue entre la source froide et l'échantillon. Si l'on admet que le flux de chaleur provenant de l'échantillon se transmet intégralement dans le fluxmètre, la mesure du gradient de température le long de ce fluxmètre est alors suffisante pour permettre de déterminer le flux de chaleur passant dans l'échantillon.

2° - La seconde méthode consiste à déduire directement la puissance calorifique traversant l'échantillon de la mesure de la puissance électrique dissipée dans la résistance contenue dans la source chaude.

Cette méthode qui présente l'avantage de fournir une mesure absolue de la conductibilité thermique permet également l'évaluation de la conductibilité thermique sur des échantillons dont les formes sont les plus diverses. C'est précisément l'un des buts recherchés ; aussi, cette méthode a été finalement adoptée.

II - Principe de la mesure de conductibilité thermique

La mesure du coefficient de conductibilité thermique est réalisée grâce à la méthode choisie, en deux opérations successives.

1° - Lors de la première opération, l'échantillon étant placé entre la source chaude et la source froide, le passage d'un courant électrique d'intensité I_1 dans la résistance chauffante est nécessaire pour maintenir en régime permanent la tête chaude à la température Θ_1 , la température de la tête froide restant égale à celle de l'eau de refroidissement Θ_0 .

Si V_1 est la différence de potentiel existant aux bornes de la résistance chauffante pour un courant d'intensité I_1 , la puissance calorifique dissipée dans la source chaude par unité de temps est donnée par :

$$W_1 = 0,24 R I_1^2 = 0,24 V_1 I_1 \text{ calories} \quad (2)$$

Cette quantité de chaleur sert, d'une part, à créer un flux de chaleur ϕ dans l'échantillon et d'autre part, à compenser les diverses fuites thermiques F possibles. Ces fuites F correspondent essentiellement aux :

- pertes par convection,
- fuites thermiques le long des supports (les plus importantes),
- fuites thermiques le long des fils de thermocouples et à l'énergie dissipée par rayonnement.

2° - Pour séparer ces deux quantités de chaleur ϕ et F et déterminer le flux de chaleur ϕ qui seul intervient dans la détermination du coefficient K de conductibilité thermique, on est donc conduit à une seconde opération :

Les deux sources étant dans la même position que lors de la première expérience, on ôte l'échantillon qui était placé entre elles. Puis on détermine la puissance calorifique K_2 qu'il faut fournir à la source chaude pour conserver en régime permanent cette source chaude à la température θ_1 , la source froide étant toujours à la température θ_0 . Si V_2 est alors la différence de potentiel créée aux bornes de la résistance R par le passage d'un courant d'intensité I_2 , W_2 est donné par

$$W_2 = 0,24 R I_2^2 = 0,24 V_2 I_2 \quad (3)$$

La quantité de chaleur W_2 ainsi dissipée dans la source chaude sert uniquement à compenser les pertes thermiques F si en première approximation, on considère que les pertes dues à l'échantillon de graphite sont négligeables (voir paragraphe III). Par suite, $F = W_2$, et la quantité de chaleur Q ayant réellement traversé l'échantillon dans l'unité de temps, est donnée par :

$$Q = W_1 - W_2 \quad (4)$$

III - Causes d'erreur

L'examen de la formule (1) montre que les principales causes d'erreur proviennent de l'évaluation de Q , de $\Delta\theta$ et de la mesure des dimensions des échantillons.

3.1 - Erreur sur $\Delta\theta$

Les températures sont mesurées à l'aide de thermocouples chromel-alumel dont la force-électromotrice est de $40 \mu V. ^\circ C^{-1}$, reliés à un enregistreur galvanométrique. Dans les conditions opératoires habituelles, les valeurs de $\Delta\theta$ sont comprises entre 2 et $4^\circ C$ et l'erreur commise sur θ est de l'ordre de $\frac{1}{100}$. Les thermocouples étant disposés en différentiel entre la source chaude et la source froide, la lecture de $\Delta\theta = \theta_3 - \theta_2$ est directe, cette mesure est effectuée avec une erreur $\Delta(\Delta\theta) \leq \frac{1}{100}$.

3.2 - Erreur sur Q

Elle est définie par la somme des erreurs absolues commises sur l'évaluation des quantités W_1 et W_2 .

$$\begin{aligned} \text{D'après (4)} \quad \Delta Q &= \Delta W_1 + \Delta W_2 \\ \text{donc} \quad \frac{\Delta Q}{Q} &= \frac{\Delta W_1}{W_1 - W_2} + \frac{\Delta W_2}{W_1 - W_2} \end{aligned}$$

W_2 représente en réalité les pertes thermiques de la source chaude et est toujours très inférieur à W_1 chaleur de transfert. Dans le cas les plus défavorables, on a au moins $W_1 \geq 4 W_2$.

Par suite $W_1 - W_2 \geq 3 W_2$

$$\text{et} \quad W_1 - W_2 \geq W_1 - \frac{W_1}{4} = \frac{3 W_1}{4}, \text{ ce qui conduit à } \frac{\Delta Q}{Q} \leq \frac{4 \Delta W_1}{3 W_1} + \frac{\Delta W_2}{3 W_2}$$

L'erreur $\frac{\Delta W_2}{W_2}$ est conditionnée par la précision de lecture de V et de I ; en admettant une précision de 1/100 pour chacune de celles-ci, il vient $\frac{\Delta W_2}{W_2} \leq \frac{2}{100}$.

Cette même erreur intervient aussi dans le terme W_1 mais à celles-ci s'ajoutant les pertes thermiques subies par l'échantillon de graphite. Les pertes par conduction dans l'air, ont été rendues négligeables en opérant sous vide poussé, aussi les seules fuites thermiques pouvant exister sont celles dues au rayonnement de l'échantillon. Ces pertes d'énergie E_0 sont proportionnelles à la puissance quatrième de la différence de température entre l'échantillon et la paroi de l'appareil de mesure.

Elles sont données par la loi de Stéphan

$$E_0 = 0,24 \times \alpha \times \sigma (T_1^4 - T_0^4)$$

où α est le facteur d'émissivité de l'échantillon. Par définition

$\alpha = 1$ pour le corps noir.

$\sigma =$ est le coefficient de rayonnement des corps noirs ($5,7 \times 10^{-12}$ Watts.cm²)

$T_1 =$ la température absolue de l'échantillon

$T_2 =$ la température absolue de la paroi de l'appareil.

Si on se place dans le cas le plus défavorable où les échanges thermiques sont maximum (cas des corps noirs) on a $\alpha = 1$ et les pertes sont de l'ordre de $0,24 \times 2,4 \times 10^{-3}$ calories. Comme la puissance dissipée dans l'échantillon est de l'ordre de 0,5 watt au minimum, l'erreur maximum commise en négligeant ces fuites est donc de $\frac{5}{1000}$. En définitive, l'erreur totale sur la quantité Q est donc de l'ordre de 4 pour cent.

$$\frac{\Delta Q}{Q} \leq \frac{4}{100}$$

3.3 - Erreur sur Δ_x et S

On peut admettre pour ces deux mesures une erreur de l'ordre de $\frac{1}{100}$. Pour certains échantillons comme ceux obtenus par carottage dans les empilements des réacteurs G1 ou G2 des erreurs plus importantes sont dues à la forme non cylindrique et aux faces non parallèles des éprouvettes.

En définitive, cette méthode de mesure fournit des valeurs du coefficient de conductibilité thermique avec une précision de l'ordre de 6 pour cent.

B - REALISATION EXPERIMENTALE DE L'APPAREIL DE MESURE

Le coefficient de conductibilité thermique doit être mesuré sur des échantillons pouvant avoir des formes et des dimensions variables, aussi nous avons été conduit à réaliser des sources chaudes et froides de surface suffisamment grande, l'une d'elles possédant une grande mobilité par rapport à l'autre.

L'appareil représenté fig. 1 comprend une tête chauffante et une tête refroidie, l'ensemble étant contenu dans une cloche à l'intérieur de laquelle le vide peut être réalisé.

La source de chaleur est constituée par une résistance électrique noyée dans un bloc de terre réfractaire. Ce bloc est lui-même contenu dans une enveloppe de cuivre étanche, les fils passant par deux passages étanches isolés.

La résistance est reliée à une alimentation régulée par l'intermédiaire d'un ampèremètre et d'un potentiomètre qui permet de faire varier la puissance calorifique dissipée. Pour évaluer exactement la puissance électrique dissipée dans la résistance R, on ne tient pas compte de la valeur de R qui peut varier suivant l'intensité du courant qui circule mais on mesure la chute de tension directement aux bornes de R au moyen d'un voltmètre à cadre mobile.

Dans les conditions expérimentales normales, l'intensité du courant peut varier de 0,1 à 0,5 ampères. Un tel intervalle est nécessaire pour permettre la mesure des coefficients de conductibilité thermique K aussi bien sur des échantillons de graphite non irradié que sur des échantillons de graphite irradié ; à cet intervalle correspond des valeurs de K variant de 0,5 à 0,001 cal.cm⁻¹ s.⁻¹°C⁻¹. La tête chaude est fixée à un support mobile verticalement le long de deux tiges filetées par l'intermédiaire d'une plaque en téflon qui assure une bonne isolation thermique de la tête par rapport à l'ensemble de l'appareil. Le téflon du fait de sa faible conductibilité thermique est d'un emploi particulièrement recommandé. Pendant l'expérience, le contact entre la source chaude et l'échantillon de graphite est assuré par une vis de serrage qui appuie sur le support (fig. 1).

La source froide est constituée d'un récipient en laiton clos par une pastille de cuivre, récipient à l'intérieur duquel on assure une circulation d'eau à température constante. L'eau qui arrive directement sous la pastille de cuivre a un débit suffisamment important pour que toutes les calories amenées par l'échantillon soient immédiatement évacuées. La pastille en cuivre est facilement démontable et interchangeable avec une seconde sur laquelle peut se visser un fluxmètre. L'emploi du fluxmètre permet en particulier, de vérifier que la puissance recueil-

lie sur la tête froide est bien sensiblement égale à celle fournie par la tête chaude. La circulation d'eau se fait en circuit fermé grâce à une pompe de circulation et pour éviter l'échauffement de l'eau dû à l'accumulation des calories retirées à la tête froide, on utilise un bain à température constante.

Pour assurer de bons contacts thermiques avec l'échantillon, les faces de la source chaude et de la source froide ont été polies et dorées.

Les thermocouples chromel-alumel utilisés pour les mesures des diverses températures, au nombre de cinq sont montés conformément au schéma représenté fig. 2.

Le thermocouple n° 1 qui traverse la tête chaude et sort au centre de la face dorée peut se fixer dans un trou percé au centre de la face terminale de l'échantillon de graphite en contact.

Le thermocouple n° 2 traverse la tête froide et sort au centre de la pastille en cuivre doré et peut se fixer de la même manière dans un trou percé au centre de la face de l'échantillon de graphite en contact avec la tête froide. Les soudures froides de ces deux thermocouples sont maintenues à la même température tout en étant isolées électriquement l'une par rapport à l'autre.

Le thermocouple n° 3 placé dans la tête chaude est fixé dans la face en contact avec l'échantillon à quelques dixièmes de millimètre de la surface.

De même, le thermocouple n° 4 vient se loger dans la pastille de cuivre en contact avec l'échantillon de graphite, à quelques dixièmes de millimètre de la surface.

Ces deux thermocouples n° 3 et 4 isolés électriquement sont branchés en différentiel ce qui permet de connaître directement la différence de température existant entre la tête chaude et la tête froide.

La différence des températures mesurées avec les thermocouples n° 1 et 2 fournit la différence de température existant entre les deux faces de l'échantillon de graphite étudié. Une étude systématique montre que l'emploi de l'un ou l'autre de ces deux écarts de température fournit des valeurs des coefficients de conductibilité thermique de graphite identiques, ce qui tendrait à prouver que la chute de température au contact graphite - cuivre doré est négligeable.

L'emploi des thermocouples 3 et 4 facilite les mesures et les résultats obtenus sont plus précis. En effet, la distance entre les deux points où la température est mesurée correspond à la longueur de l'échantillon. Au contraire, l'utilisation des thermocouples 1 et 2 nécessite le perçage de trous au centre des extrémités des échantillons et la fixation en force des thermocouples dans ces trous pour assurer de bons contacts thermiques. Si la connaissance précise de la profondeur de ces trous est possible, par contre, le point exact de contact entre le thermocouple et le graphite est difficile à déterminer. Il en résulte une erreur assez importante sur l'évaluation de la distance entre les thermocouples. De plus, deux lectures consécutives sont nécessaires pour obtenir la différence de température entre le point chaud et le point froid.

Ces différentes raisons nous ont par conséquent, incité à prendre de préférence la mesure donnée par les thermocouples 3 - 4 pour déterminer les coefficients de conductibilité thermique du graphite.

Un cinquième thermocouple, logé au voisinage de la face de la source chaude en contact avec l'échantillon a sa soudure froide fixée sur le bâti. Cette soudure froide peut également être plongée dans de la glace fondante pour mesurer la température exacte de la tête chaude.

Les forces électromotrices des thermocouples sont mesurées à l'aide d'un enregistreur galvanométrique SEFRAM type GR 4 VAT. L'appareil de mesure de conductibilité thermique est relié à une installation de vide comportant principalement une pompe à palette et une pompe à diffusion d'huile. Un voyant à décharge permet d'apprécier la qualité du vide primaire et une jauge Ionivac à tête métallique (fig. 3) permet d'estimer la pression limite obtenue en vide secondaire. Afin de simplifier les mesures et pour ne pas être astreint à effectuer systématiquement deux expériences avec et sans échantillon, on a établi la courbe donnant les pertes d'énergie calorifique en fonction de la différence de température régnant entre la tête chaude et le bâti, pour une position de la tête chaude constante. En effet, les pertes les plus importantes proviennent de la conduction le long du support et des fils de thermocouples et elles dépendent donc uniquement de cette différence de température (fig. 4). En tenant compte de cet étalonnage, la durée de chaque mesure est approximativement de 2 heures.

C - APPLICATION A L'ETUDE DE LA CONDUCTIBILITE THERMIQUE DU GRAPHITE

I - Avant d'entreprendre toute étude systématique, l'influence de la forme et des dimensions des échantillons de graphite a été examinée. Pour cela, dans une même pièce de graphite, des échantillons de diamètre 15, 12, 10 mm et de 40 mm de longueur ont été prélevés dans la direction de filage Z. La position de ces échantillons a été choisie de manière que l'on puisse considérer leurs conductibilités thermiques comme équivalentes.

Les résultats obtenus montrent que la valeur du coefficient de conductibilité thermique est indépendante du diamètre de l'échantillon. De même en diminuant la longueur des échantillons étudiés de 40 mm à 25 mm puis 13, 10 et 5 mm de longueur, on obtient la même valeur de la conductibilité thermique (tableau I) aux erreurs expérimentales près.

Les résultats obtenus sont donc indépendants de la dimension des échantillons ce qui permet d'utiliser l'appareil mis au point pour mesurer non seulement la conductibilité thermique des graphites nucléaires irradiés ou non irradiés, mais aussi la conductibilité des pyrographites et pyrocarbones qui existent généralement sous la forme d'échantillons de faible épaisseur.

De plus, ces résultats montrent que les mesures sont indépendantes de la puissance dissipée dans la source chaude.

II - Graphite non irradié

a) une étude statistique du graphite type EDF.2 fabriqué par la Cie Pechiney issu de coke L et ayant subi une imprégnation au brai a été effectuée. Une série d'échantillons (dimensions $\emptyset = 15$ mm, $L = 25$ mm) prélevés parallèlement (63 échantillons) ou perpendiculairement (70 échantillons) à la direction du filage Z ont été mesurés. Les résultats obtenus fournissent les valeurs moyennes $\overline{K_0}$ de la conductibilité thermique dans les deux directions qui sont :

III - Graphite irradié

Grâce à cet appareil, des mesures ont été effectuées sur des éprouvettes de graphite irradié issues de différents réacteurs à modérateur du graphite. Les échantillons mesurés n'avaient pas été mis en pile en vue de ces mesures mais furent prélevées par carottage directement dans l'empilement du modérateur. En conséquence, la conductibilité thermique du graphite considéré, avant irradiation, n'était pas connue. La détermination des dommages créés à la conductibilité thermique du graphite par irradiation exigent la connaissance du coefficient de conductibilité thermique initial K_0 , nous avons donc été conduits à effectuer des études statistiques sur des échantillons de graphite du même type que celui irradié. Pour le réacteur G1, dont l'empilement est composé en plus grande partie de graphite issu de coke S non imprégné au brai, une étude qui a porté sur une soixantaine d'échantillons, a donné :

- dans la direction perpendiculaire au filage $\overline{K_{OY}} = 0,21 \text{ cal.cm}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$
- dans la direction parallèle au filage $\overline{K_{OZ}} = 0,33 \text{ cal.cm}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$

En ce qui concerne les empilements des réacteurs G2 et G3, ils sont constituée de graphite Péchiney issus de coke L ayant également subi une imprégnation au brai.

Pour le premier type de ces graphites, une étude statistique a donné :

- dans la direction perpendiculaire au filage $\overline{K_{OY}} = 0,30 \text{ cal.cm}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$
- dans la direction parallèle au filage $\overline{K_{OZ}} = 0,48 \text{ cal.cm}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$

Pour le graphite issu de coke L on a trouvé d'autre part,

- dans la direction perpendiculaire au filage $\overline{K_{OY}} = 0,30 \text{ cal.cm}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$
- dans la direction parallèle au filage $K_{OZ} = 0,36 \text{ cal.cm}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$

a) Effets de l'irradiation sur le graphite

L'irradiation a conduit à une détérioration du coefficient de conductibilité thermique qui commence à devenir importante tout au moins au voisinage de la température ambiante où les mesures effectuées. En effet, le rapport $\frac{K_0}{K_i} - 1$ qui est représentatif de cette détérioration atteint dans la région la plus wignérisée de l'empilement des valeurs de l'ordre de 15 à 17. Après regroupement de toutes les valeurs ainsi mesurées, il est possible d'étudier à différentes températures d'irradiation l'évolution du rapport $\frac{K_0}{K_i} - 1$ en fonction de la dose (fig. 8). On peut également observer la variation du rapport $\frac{K_0}{K_i} - 1$ en fonction de la température d'irradiation pour une dose constante de $5 \times 10^{20} \text{ n.cm}^{-2}$ (fig 9).

b) Effets de l'irradiation et de recuits successifs sur le graphite

Les mesures effectuées sur des échantillons extraits de l'empilement de graphite du réacteurs G1 qui a subi plusieurs opérations de recuits, ont donné pour le rapport $\frac{K_0}{K_i} - 1$ des valeurs s'élevant jusqu'à 70 et même 80 dans la région la plus wignérisée. L'évolution des dommages créés à la conductibilité thermique a été constamment suivie depuis la troisième opération de recuit. En fonction de la dose d'irradiation on a observé l'existence d'un effet précoce 3 quelle que soit la température d'irradiation. Cet effet précoce se caractérise par une croissance rapide du rapport $\frac{K_0}{K_i} - 1$ au début de la ré-irradiation, ceci jusqu'à des doses de l'ordre de $0,3 \times 10^{20} \text{ n.cm}^{-2}$, croissance qui s'atténue pour des doses plus élevées (fig. 10). Cet "effet précoce" observé pour le coefficient de conductibilité thermique du graphite irradié puis recuit

et re-irradié et ayant subi ainsi plusieurs cycles est en bon accord avec des résultats relatifs à l'énergie interne et aux paramètres cristallins [4].

c) Validité des résultats obtenus

Bien que ne s'appliquent pas à des graphites issus du même coke et fabriqués selon des méthodes quelque peu différentes, les résultats obtenus ont été comparés à ceux publiés en Angleterre par J.H.W. SIMMONS et W.N. REYNOLDS [5] et aux Etats-Unis par NIGHTINGALE DAVIDSON et SNYDERS [6]. En effet, si dans ces conditions la comparaison des valeurs absolues des coefficients de conductibilité thermique K n'est pas valable, par contre, il est possible de comparer les valeurs du rapport $\frac{K_0}{K_i} - 1$ qui représente les dommages causés par l'irradiation. Bien entendu, il est nécessaire que les doses reçues par les différents graphites soient également comparables. Aussi, les résultats publiés utilisés, ont été obtenus dans des réacteurs uranium-graphite [6] ou ramenés aux "doses graphite" [5] de manière à éviter les différences inhérentes aux spectres de flux.

Les résultats de cette comparaison (fig. 9) sont très satisfaisants et confirment la validité de la méthode de mesure de la conductibilité thermique du graphite mise au point.

CONCLUSION

Les résultats indiqués à titre d'exemple, montrent l'intérêt et les possibilités de l'appareil réalisé :

Les conductibilités thermiques du graphite irradié ou non-irradié peuvent être mesurées sur des échantillons de dimensions et de formes variables. Les mesures effectuées montrent que les valeurs des coefficients de conductibilité thermique obtenues pour différents produits sont en bon accord avec celles publiées, en particulier les résultats relatifs aux dépôts de carbone pyrolytique sont satisfaisants.

La conductibilité thermique du graphite est une donnée importante pour la réalisation et le fonctionnement des réacteurs équipés d'un modérateur de graphite. Aussi, l'appareil mis au point permettra de satisfaire aux nombreuses études technologiques à entreprendre ou à poursuivre dans ce domaine. Il en est ainsi notamment pour les effets des rayonnements et pour l'influence des paramètres de fabrication sur la conductibilité thermique du graphite. Simultanément, l'étude des corrélations existant entre l'énergie interne et les dommages créés à la conductibilité thermique et aux paramètres cristallins par l'irradiation, sera poursuivie.

- BIBLIOGRAPHIE -

- [1] BOCQUET M. , RAPPENEAU J.
Bull. d'Inf. Sc. et Techn. du C.E.A. 1961, n° 48, p. 12

- [2] BOCQUET M. , MICAUD G.
Journal des Matériaux Nucléaires (à paraître)

- [3] Note RAYTHEON - Pyrographite

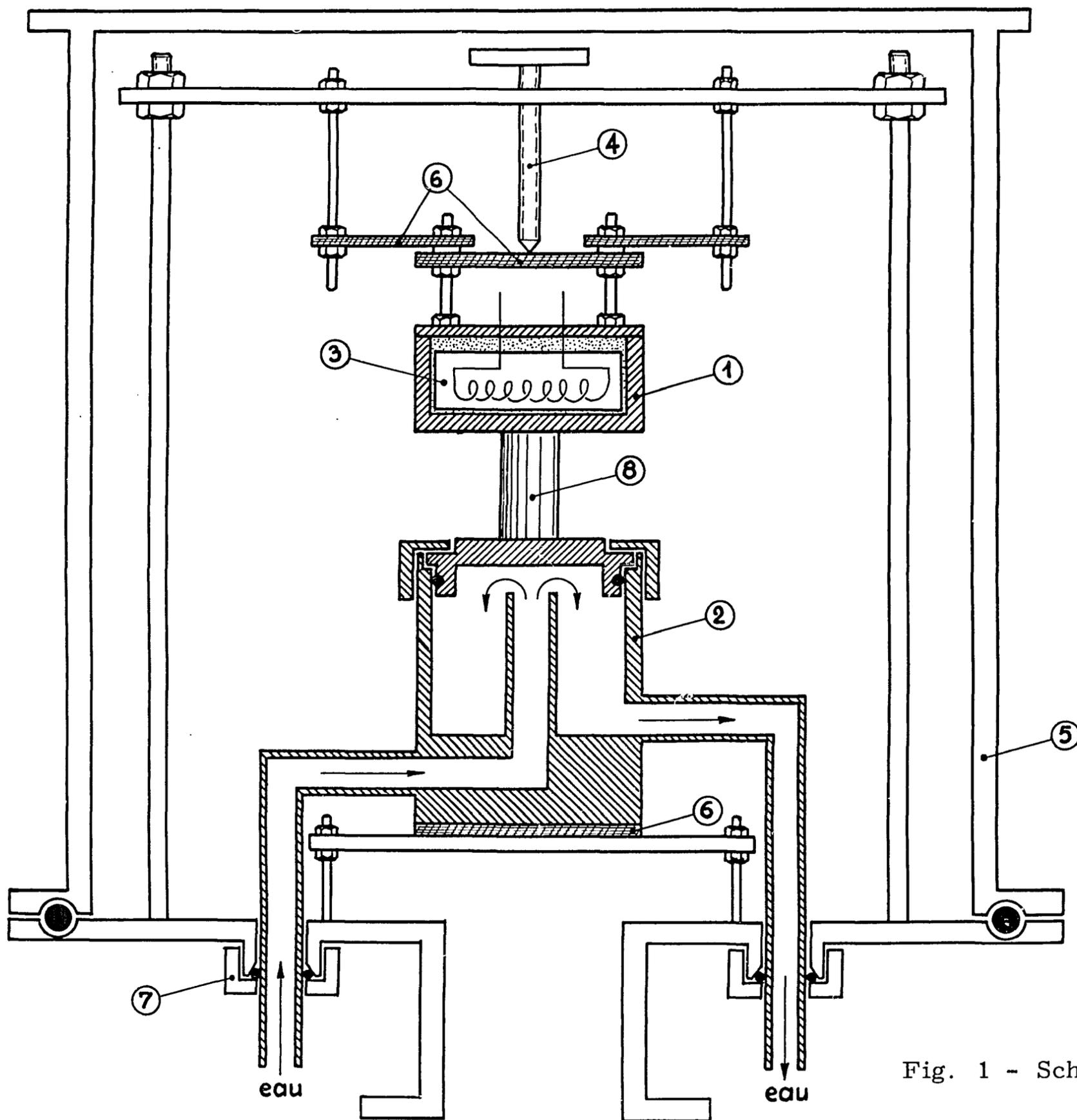
- [4] RAPPENEAU J. , FILLATRE A. MICAUD G., QUETIER M.
Colloque sur les "effets des rayonnements dans les solides et les matériaux pour réacteur" - VENISE, 7-11 mai 1962

- [5] REYNOLDS W.N. , SIMMONS J.H.W.
Rapport A.E.R.E. , R.3871, novembre 1961

- [6] NIGHTINGALE R.E. , DAVIDSON J.M. and SNYDER W.A.
Ind. Int. Conf. Peaceful Used of Atomic Energy - June 1958.

DIAMETRE DE L'ÉCHANTILLON	LONGUEUR mms	$Q_{cal.}$	$\Delta\theta_{oc}$	$K_{cal. cm^{-1} s^{-1} °C^{-1}}$	$\Delta K 6\%$
10 mms	40	0,464	5°46	0,432	0,026
10	26,6	0,474	3°87	0,413	0,025
10	26,6	0,390	3°13	0,422	0,026
10	26,6	0,307	2°5	0,415	0,025
10	26,6	0,0765	0°624	0,415	0,025
10	9,8	0,470	1°36	0,432	0,026
10	5	0,474	0°73	0,413	0,025
12	40	0,474	3°38	0,432	0,026
12	40	0,470	3°85	0,432	0,026
12	25	0,474	2°47	0,424	0,026
12	13,46	0,474	1°33	0,422	0,026
15	40	0,474	2°53	0,423	0,026
15	40	0,474	2°51	0,425	0,026
15	25	0,474	1°56	0,429	0,026

Tableau I - Influence des dimensions des échantillons de graphite sur la mesure de la conductibilité thermique.



- ① Source chaude
- ② Source froide
- ③ Bloc chauffant
- ④ Vis de serrage
- ⑤ Cloche à vide
- ⑥ Plaque en téflon
- ⑦ Passage étanche
- ⑧ Échantillon de graphite

Fig. 1 - Schéma de l'appareil de mesure

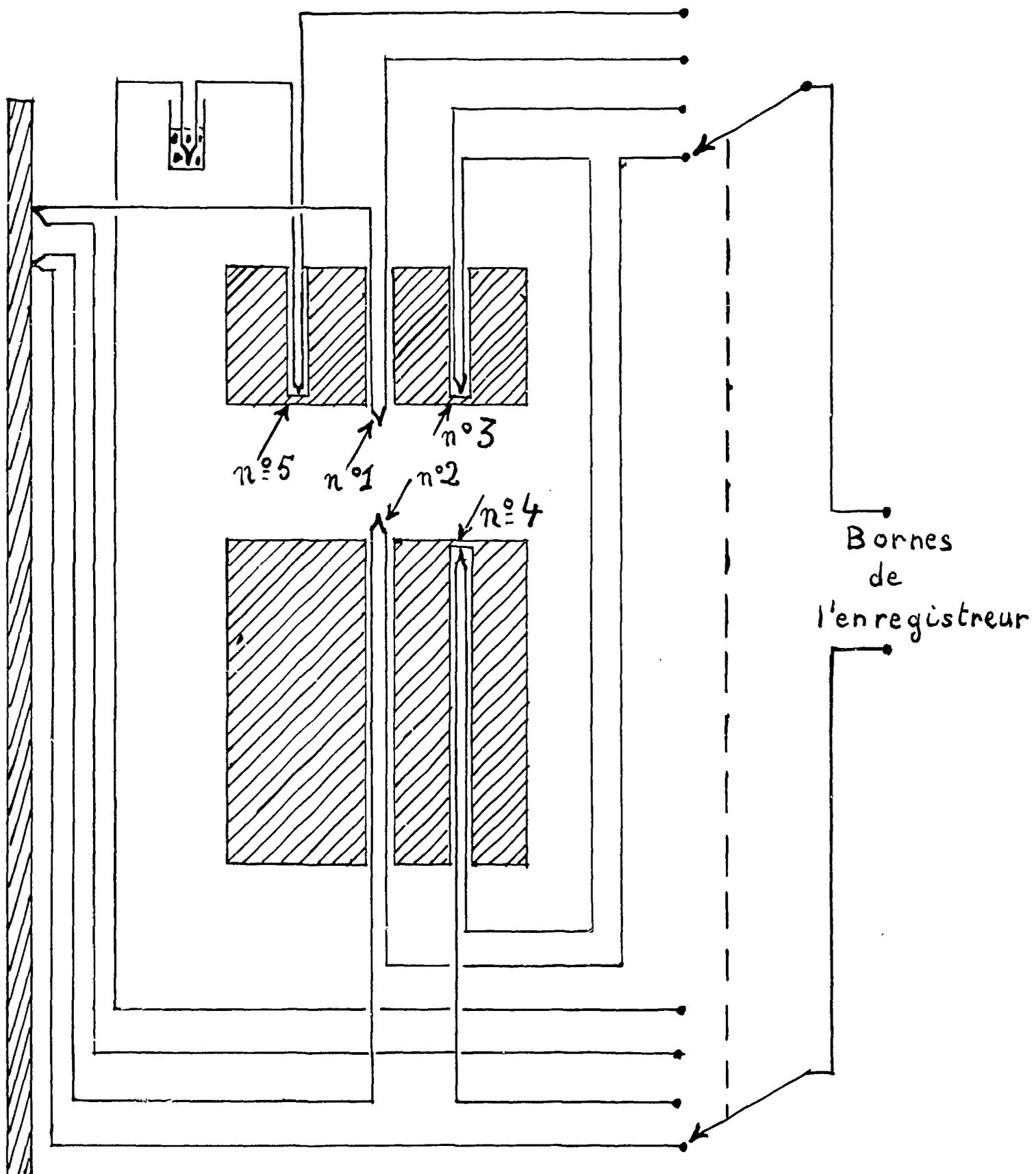


Fig. 2 - Schéma de montage des thermocouples

- 1 cloche à vide
- 2 tête de jauge
- 3 coffret de jauge
- 4 pompe à diffusion d'huile
- 5 réserve de vide
- 6 voyant à décharge
- 7 pompe à palettes
- 8 régulateur
- 9 potentiomètre de réglage

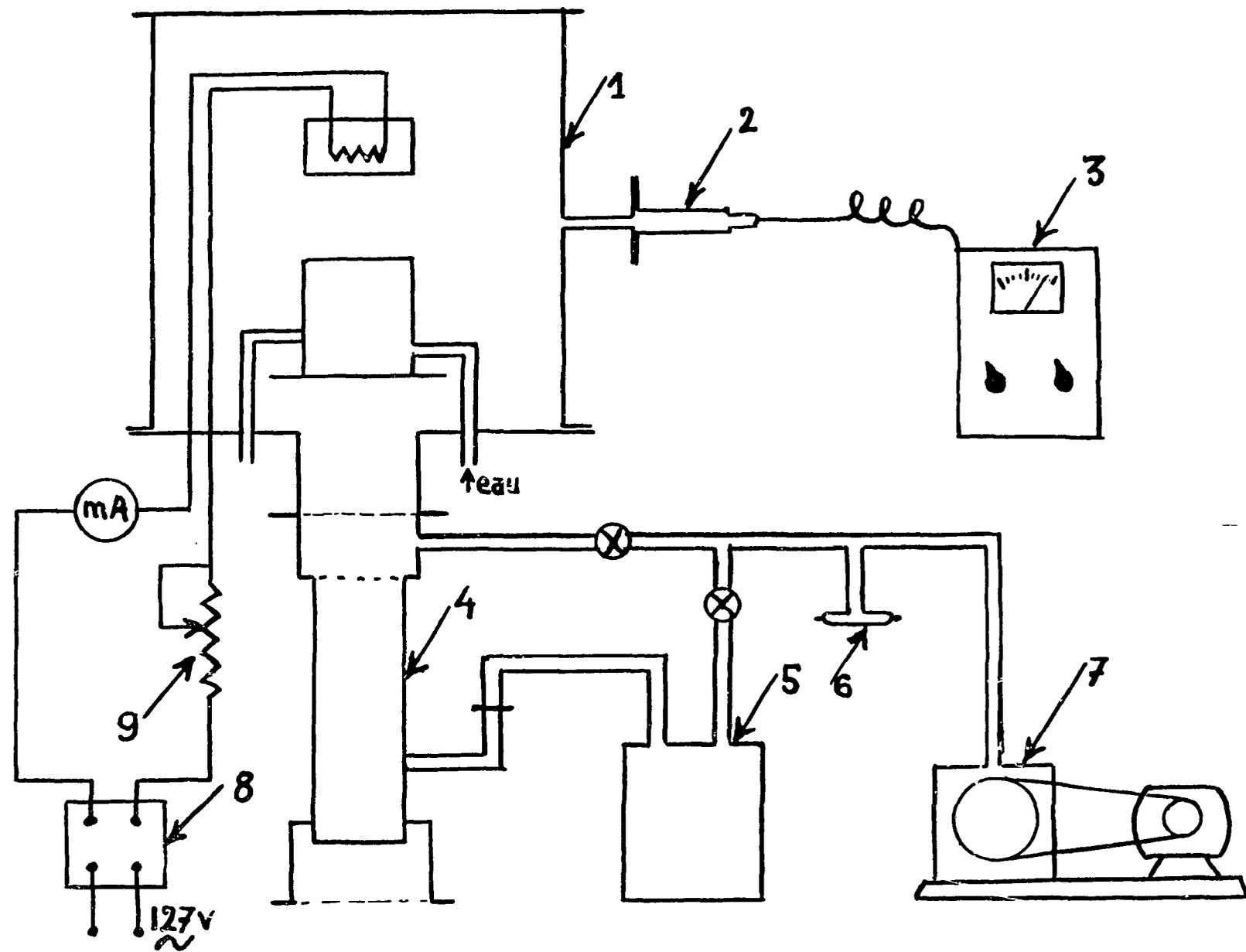


Fig. 3 - Schéma d'ensemble de l'appareil

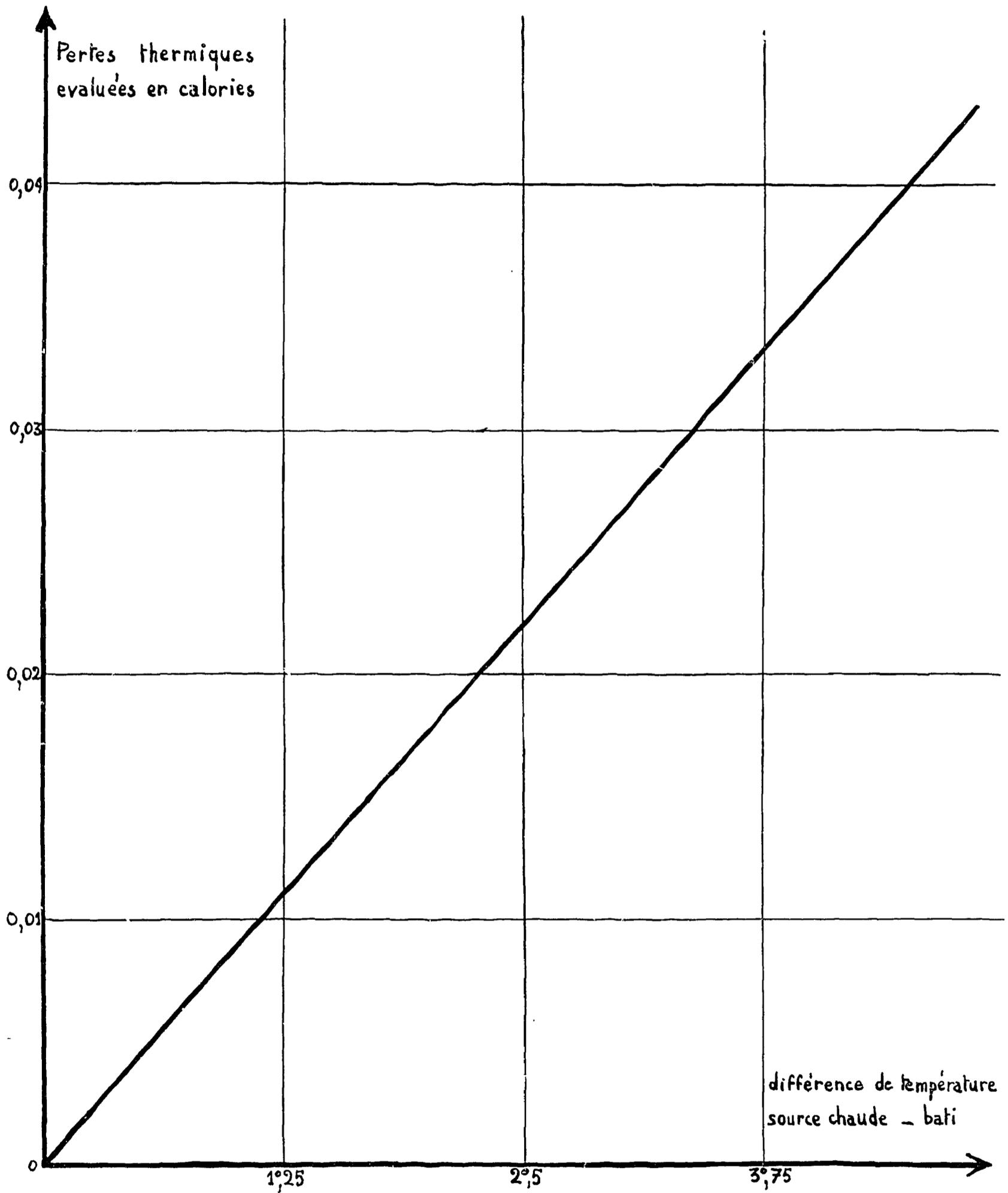
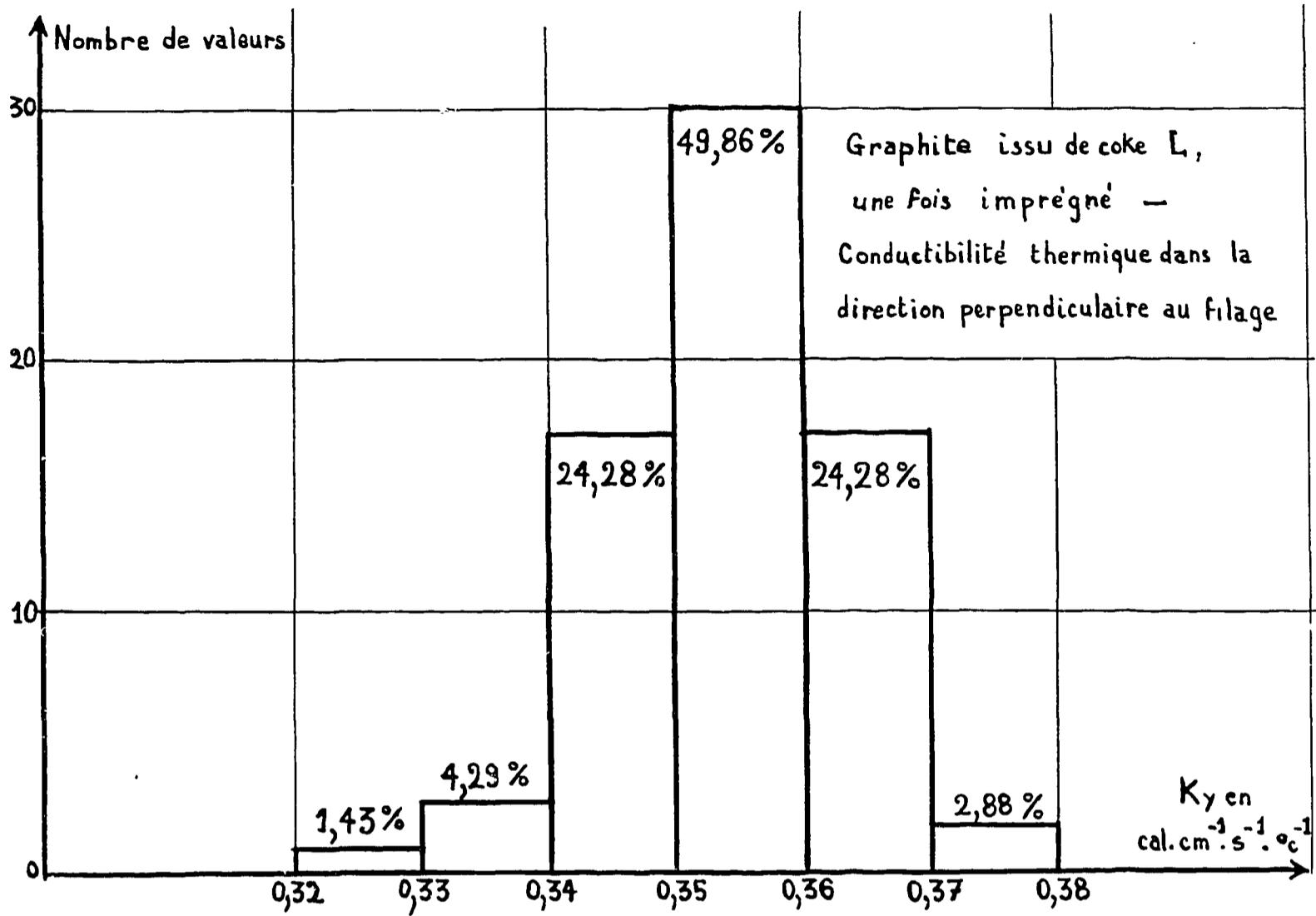
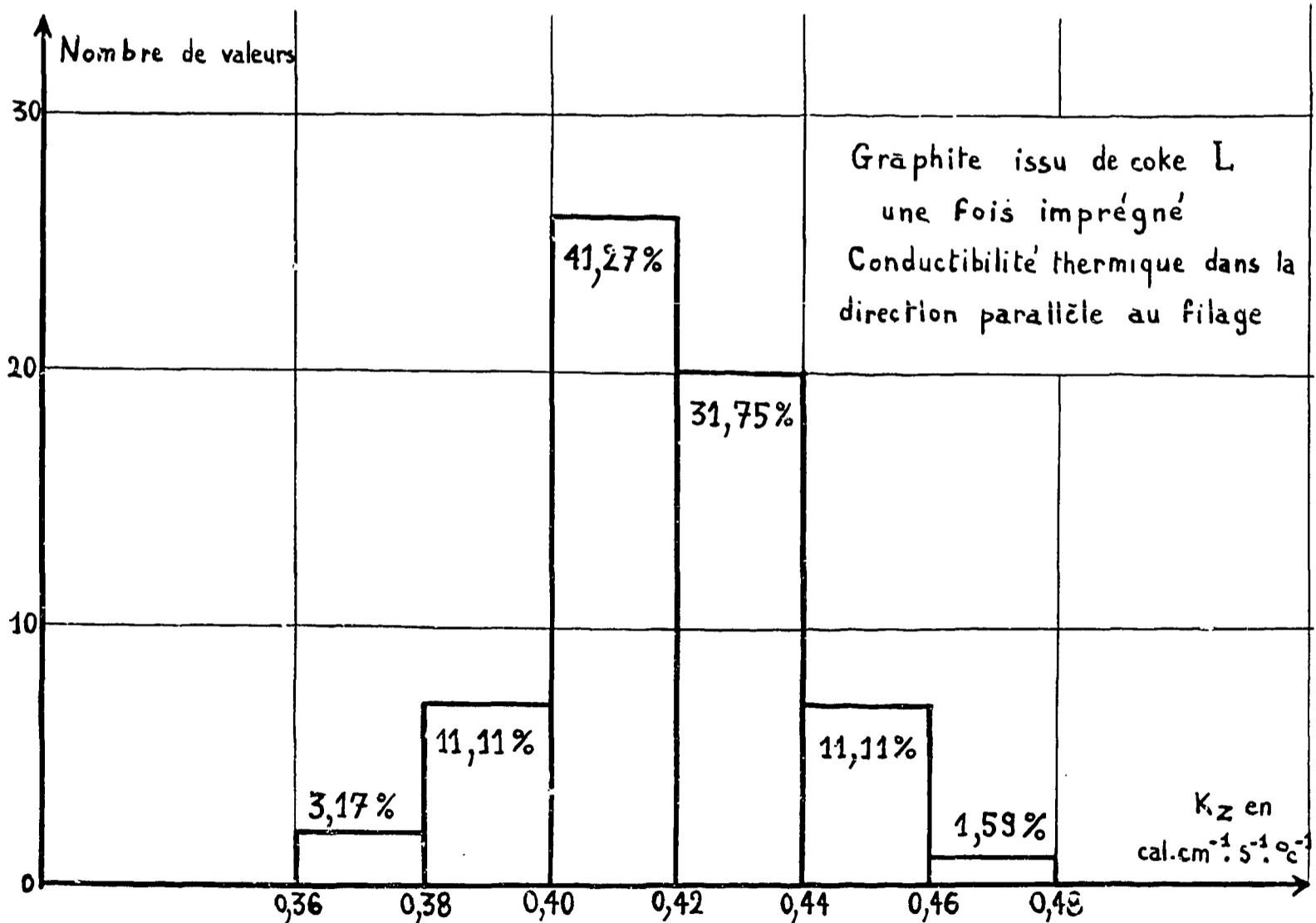


Fig. 4 - Courbe d'étalonnage de l'appareil



- Fig. 5 -



- Fig. 6 -

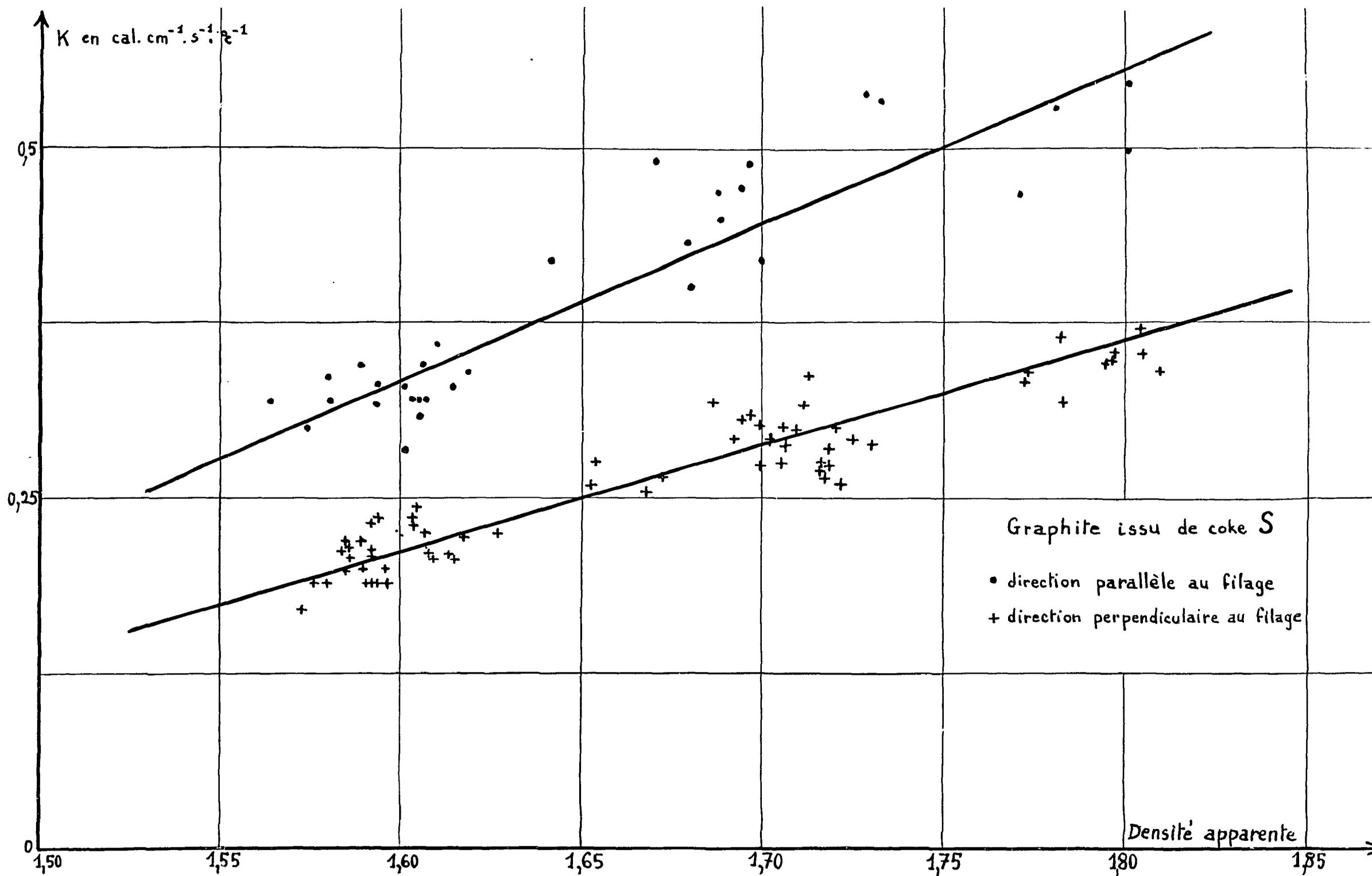


Fig. 7 - Relation conductibilité thermique - densité apparente.

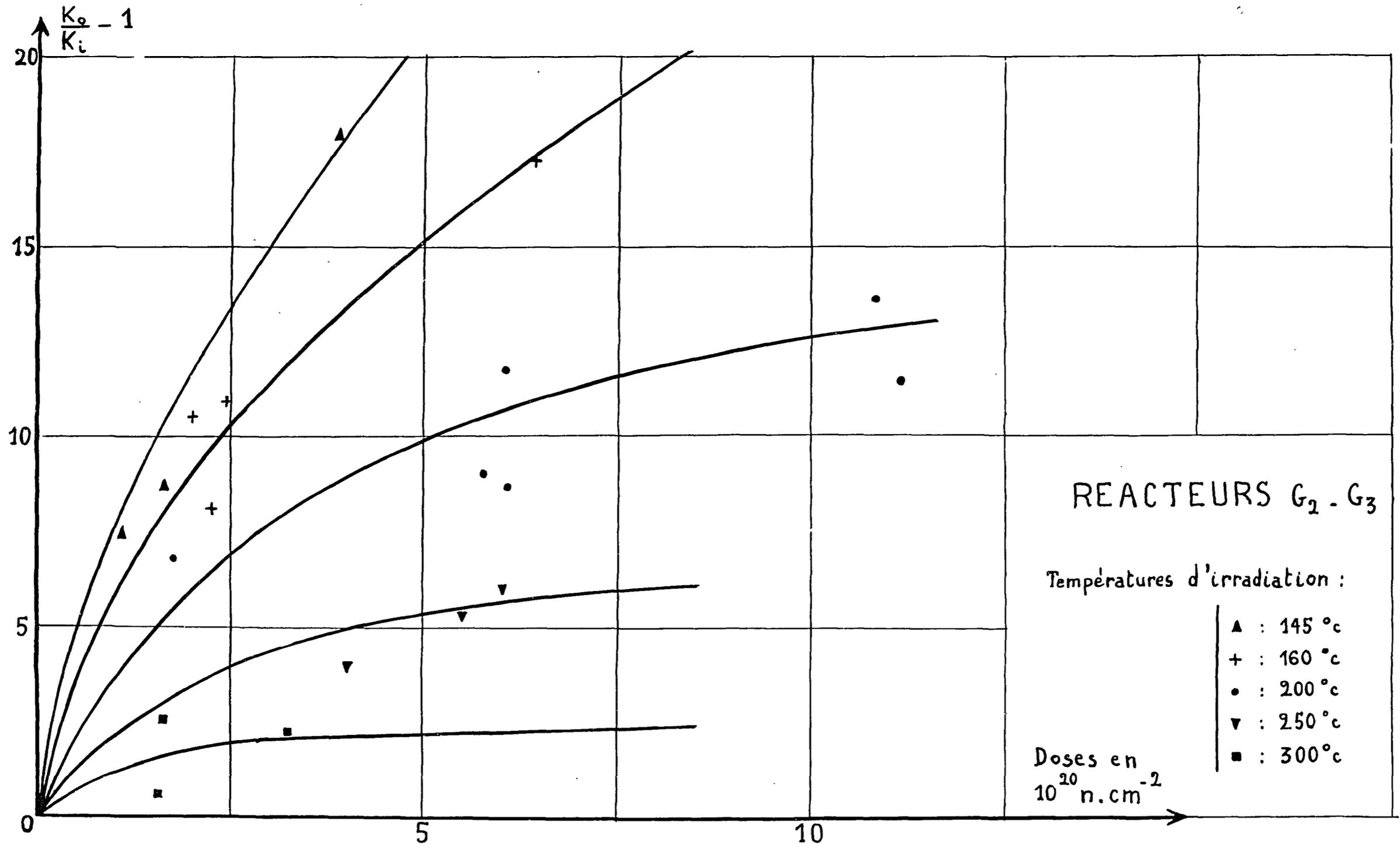


Fig. 8 - Croissance des dommages créés à la conductibilité thermique en fonction de la dose à différentes températures d'irradiation.

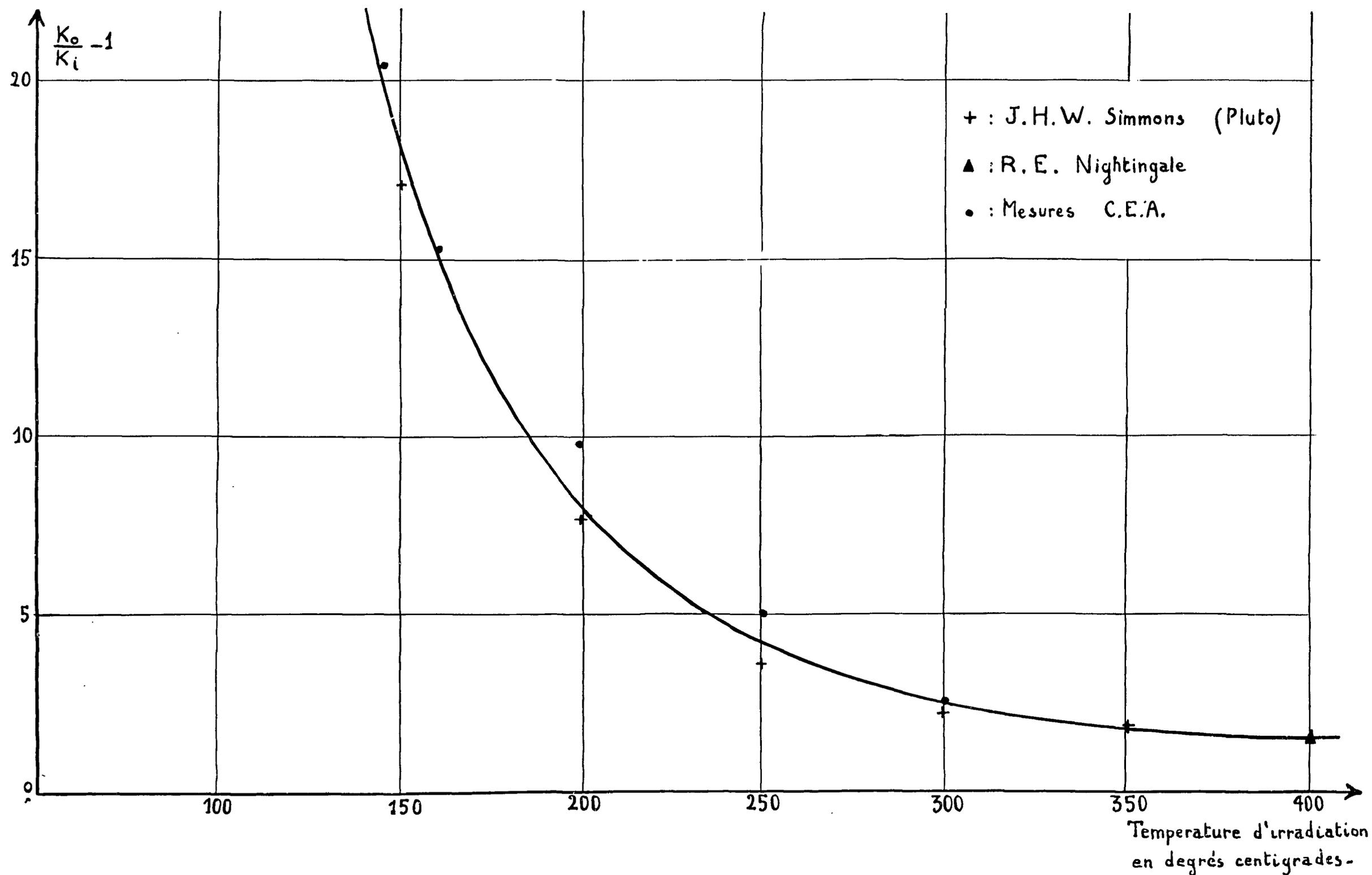


Fig. 9 - Dommages créés à la conductibilité thermique en fonction de la température d'irradiation pour une dose de $5 \cdot 10^{20}$ n. cm⁻².

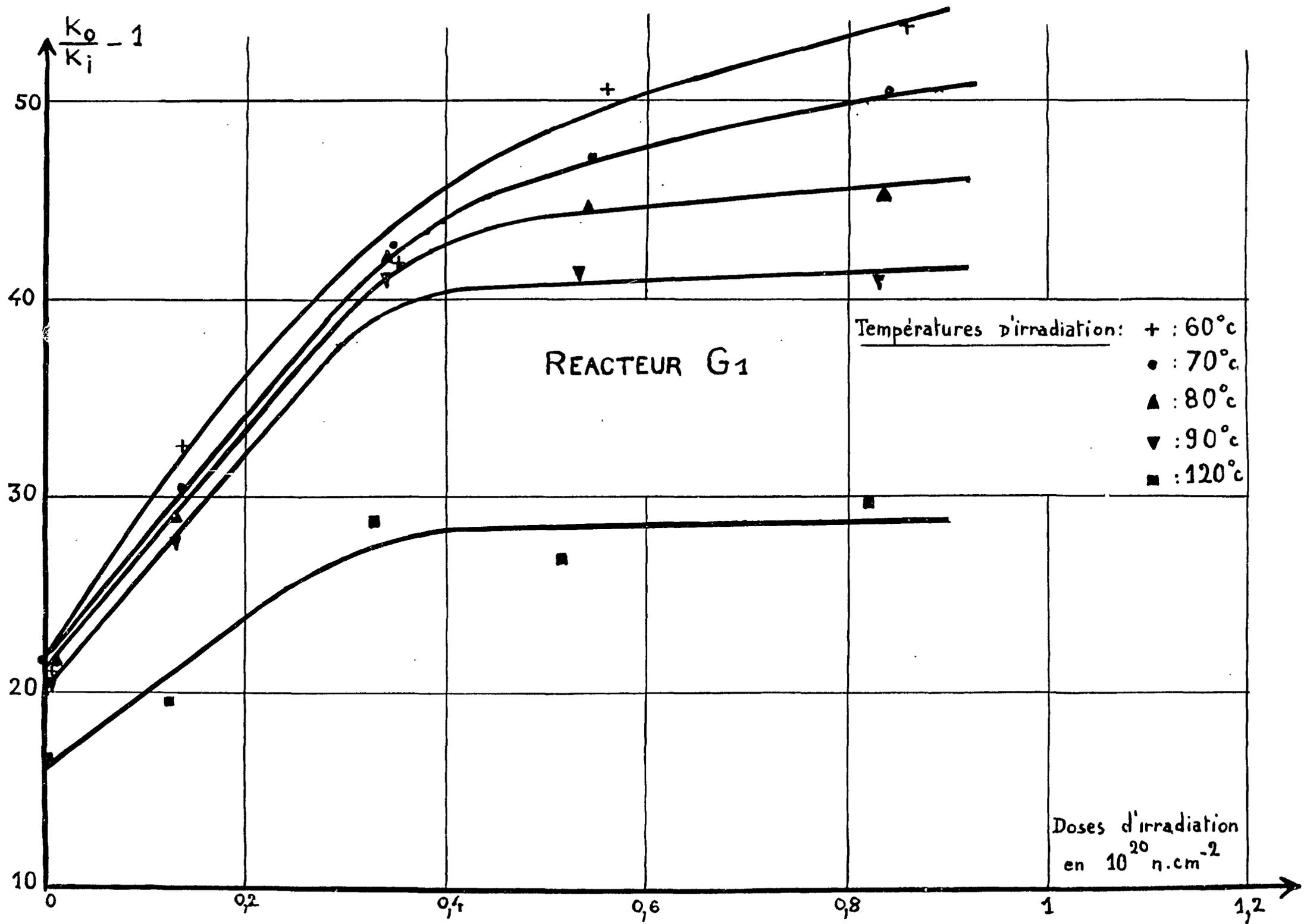


Fig. 10 - Croissance des dommages créés à la conductibilité thermique en fonction de la dose de ré-irradiation à différentes températures.