

log

102

NS

physique

GRO/202

T H E S E

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR INGENIEUR

Spécialité : Métallurgie

par

Alain GROFF

Ingénieur I.N.S.A.

CONTRIBUTION A L'ETUDE DU DEGAGEMENT DES GAZ DE FISSION
ET DU GONFLEMENT DES COMBUSTIBLES NUCLEAIRES
DE TYPE CARBURE UC et $(U_{0,8}, Pu_{0,2}) C$

Soutenue le 20 février 1974, devant la Commission d'Examen

MM. LACOMBE	Président
MICHEL LALLEMENT	Examineurs
MIKAILOFF	Membre invité

T H E S E

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY

80 pages
graphes
28 cm.

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR INGENIEUR

Spécialité : Métallurgie

par

STU / 3406.

Alain GROFF

Ingénieur I.N.S.A.

CONTRIBUTION A L'ETUDE DU DEGAGEMENT DES GAZ DE FISSION
ET DU GONFLEMENT DES COMBUSTIBLES NUCLEAIRES
DE TYPE CARBURE UC et $(U_{0,8}, Pu_{0,2}) C$

Soutenue le 20 février 1974, devant la Commission d'Examen

MM. LACOMBE

Président

MICHEL
LALLEMENT

Examineurs

MIKAILOFF

Membre invité

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses dans les laboratoires du Département des Eléments Combustibles à base de Plutonium.

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur LACOMBE pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le jury d'examen, ainsi qu'à Monsieur le Professeur MICHEL et Monsieur LALLEMENT qui ont accepté d'être membres du jury.

Je remercie vivement Monsieur LALLEMENT pour l'accueil qu'il m'a réservé dans ses laboratoires.

Je tiens à remercier tout spécialement Monsieur MIKAILOFF pour les discussions fructueuses que nous avons eues ensemble, pour ses conseils et ses nombreux encouragements.

Que Monsieur DIEUMEGARD et l'ensemble du personnel de la Section du Plutonium Irradié acceptent mes remerciements pour leur constante collaboration.

Enfin, je désire assurer de ma profonde amitié Madame TROTABAS et Monsieur KRYGER ainsi que leurs techniciens et le Groupe Irradiation.

TABLE DES MATIERES

	<u>Pages</u>
INTRODUCTION	
A/ LE CADRE DE L'ETUDE	
CHAPITRE I - <u>Les carbures et leur comportement en pile :</u>	
1. Diagrammes de phase, structures cristallines	7
1.1. Les carbures d'uranium	
1.2. Le monocarbure de plutonium	
1.3. Le système UC - PuC	
2. Comportement sous irradiation	9
2.1. Modification des propriétés physiques	
2.2. Le gonflement	
CHAPITRE II - <u>Le comportement des gaz rares dans les solides :</u>	
1. La précipitation des gaz	13
1.1. La formation et la croissance des bulles	
1.2. L'instabilité des bulles sous irradiation	
2. Le dégagement des gaz de fission	18
2.1. Les mécanismes	
2.2. Calcul de la fraction de gaz dégagés par diffusion	
B/ ETUDE REALISEE	
Buts de l'étude	
CHAPITRE I - <u>Irradiation et techniques utilisées :</u>	
1. Les irradiations	25
1.1. Irradiation Ursula	
1.2. Irradiation Camille	

2. Les examens après irradiation - Techniques utilisées	30
2.1. Mesure du volume des gaz de fission dégagés pendant l'irradiation	
2.2. Mesure de densité hydrostatique	
2.3. Traitements thermiques, prélèvements des gaz de fission	
2.4. Micrographie	

CHAPITRE II - Etude du gonflement :

1. Résultats	35
1.1. Gonflement sous irradiation	
1.2. Gonflement par recuits après irradiation	
2. Interprétations	
2.1. Gonflement sous irradiation	
2.2. Gonflement par recuits après irradiation	

CHAPITRE III- Dégagement des gaz de fission :

1. Résultats	43
1.1. Gaz dégagés pendant l'irradiation	
1.2. Gaz dégagés au cours de recuits isothermes après irradiation	
2. Interprétations.....	45
2.1. Gaz dégagés pendant l'irradiation	
2.2. Gaz dégagés au cours de recuits isothermes après irradiation	

CHAPITRE IV - Interprétation des résultats pour la prévision du comportement des combustibles carbures en pile :

1. Gonflement	49
2. Dégagements des gaz de fission.....	51

CONCLUSION	53
ANNEXE I	57
ANNEXE II.....	63
BIBLIOGRAPHIE.....	67



INTRODUCTION

Les combustibles nucléaires à base de carbure, $(U, Pu)C$, sont susceptibles de remplacer dans les années à venir l'oxyde mixte $(U, Pu)O_2$ dans les nouvelles générations de réacteurs à neutrons rapides. Les avantages potentiels du carbure reposent principalement sur les deux points suivants :

- leur conductibilité thermique élevée :

$$k_{UC} = 0,17 \text{ W. } ^\circ\text{C}^{-1} \text{ cm}^{-1}$$

$$k_{UO_2} = 0,035 \text{ W. } ^\circ\text{C}^{-1} \text{ cm}^{-1}$$

- leur densité d'atomes lourds ($\text{g. d'atomes lourds/cm}^3$) supérieure de 33% à celle des oxydes, ce qui entraîne un taux de surrégénération plus élevé d'où une meilleure utilisation des réserves d'uranium et un abaissement du coût du cycle du combustible.

La fission d'un atome lourd conduit à la formation de deux atomes, produits de fission, de volume atomique total supérieur au volume atomique de l'atome initial, ce qui entraîne un gonflement du combustible. La vitesse de gonflement est définie par le pourcentage d'augmentation de volume d'un matériau 100% dense par rapport à l'unité de taux de combustion. Le gonflement doit être pris en compte lors de la définition d'un élément combustible : un volume de vide suffisant doit être prévu pour l'accommoder afin d'éviter la déformation et la rupture des gaines.

Le gonflement total peut être subdivisé en trois parties selon le type et le comportement des produits de fission :

- gonflement dû aux produits de fission solides. En première approximation, il est indépendant de la température,
- gonflement dû aux produits de fission gazeux en solution dans le combustible. Cette partie est faible par rapport au gonflement total,
- gonflement par formation de bulles de gaz. La formation et le comportement de ces bulles dépendent fortement des conditions de l'irradiation, en particulier de la température.

CHAPITRE I

LES CARBURES ET LEUR COMPORTEMENT EN PILE

1. Diagrammes de phase, structures cristallines :

1.1. Les carbures d'Uranium (Figure 1) :

Il existe trois composés : le monocarbure (UC), le dicarbure (UC_2) et le sesquicarbure (U_2C_3) d'uranium.

- UC est de composition invariante, son domaine de stoechiométrie étant très étroit. Pour $C/U \ll 0,99$ des traces de métal apparaissent aux joints de grains et pour $C/U \gg 1,01$ le carbure est biphasé, des précipités d' UC_2 étant visibles dans les grains sous forme de lamelles (structure de Widmanstätten). UC cristallise suivant une structure cubique face centrée de type NaCl ($a = 4,961 \pm 0,001 \text{ \AA}$), sa densité théorique est de $13,63 \text{ g/cm}^3$ et son point de fusion de $2390 \pm 20^\circ\text{C}$
- UC_2 est toujours sousstoechiométrique. Sa composition se situant dans le domaine $UC_{1,75} - UC_{1,90}$. Sa structure est tétragonale centrée (type CaC_2) de 1500 à 1800°C et cubique face centrée (type CaF_2) au-dessus de 1800°C .
- U_2C_3 ne peut être obtenu directement par fusion ou par frittage, mais en appliquant une contrainte sur un alliage biphasé UC - UC_2 entre 1250 et 1800°C . Sa structure est cubique centrée ($a = 8,088 \pm 0,001 \text{ \AA}$)

et sa densité théorique de $12,88 \text{ g/cm}^3$.

1.2. Le Monocarbure de Plutonium (Figure 2) :

Le domaine d'existence de Pu C se situe entre les teneurs 46 et 48 % en carbone ($0,92 < \text{C/Pu} < 0,98$). La composition équiatomique en plutonium et en carbone ne correspond pas à une phase pure mais à un domaine biphasé ($\text{Pu C} + \text{Pu}_2 \text{C}_3$), Pu C cristallise suivant une structure cubique face centrée, type Na Cl, ($a = 4,977_7 \pm 0,0003 \text{ \AA}$) et $\text{Pu}_2 \text{C}_3$ suivant une structure cubique centré ($a = 8,128_7 \pm 0,0004 \text{ \AA}$).

Les deux caractéristiques du monocarbure de plutonium :

- existence d'un intervalle d'homogénéité,
- impossibilité d'atteindre le composé stoechiométrique

sont tout à fait générales dans la série des carbures, type Na Cl. Seul le monocarbure d'uranium a un comportement exceptionnel.

1.3. Le système UC - Pu C (Figure 3) :

Pu C ne pouvant être entièrement saturé en carbone à la différence de UC, la solution solide (U, Pu) C avec $\text{C/U} + \text{Pu} = 1$ n'est obtenue que pour une teneur en UC supérieure à 36%.

Le calcul de l'équivalent carbone (C + N + O) dans les carbures mixtes ($\text{U}_{0,8} \text{Pu}_{0,2}$) C montre qu'il existe un très faible intervalle de stoechiométrie. Pour $(\text{C} + \text{N} + \text{O})/\text{M} < 0,98$ des traces de métal apparaissent aux joints de grains et pour $(\text{C} + \text{N} + \text{O})/\text{M} > 1,01$ le carbone est biphasé, la phase $\text{M}_2 \text{C}_3$ étant à l'équilibre avec MC saturé en carbone.

2. Comportement sous irradiation :

2.1. Modification des propriétés physiques :

Les lacunes et les interstitiels formés sous irradiation entraînent des variations de certaines propriétés physiques, notamment la résistivité électrique (ρ) et le paramètre (a).

De nombreuses études [4, 5, 6] ont montré que ρ et a croissent rapidement avec la dose jusqu'à une valeur maximale pour un taux de combustion de 10^{17} à 10^{18} f.cm⁻³. Au-dessus de cette dose la nature des dommages causés devient complexe, avec une tendance accrue à la formation d'amas importants de défauts.

La restauration thermique de la résistivité électrique et du paramètre s'effectue en plusieurs stades dépendant de la nature du défaut recuit. Le dernier stade débute à la température de migration des lacunes, qui a été trouvée égale à 700°C par Griffiths dans ses expériences de trempe [7].

2.2. Le gonflement :

L'importance du gonflement dépend du type, du comportement des produits de fission (P.F.) et de la composition du carbure.

2.2.1. Produits de fission solides : Dans les carbures, les produits de fission solides sont présents sous différentes formes [8] :

- P.F. totalement ou partiellement solubles : Zr, Nb, Mo, terres rares
- P.F. formant des carbures ternaires ou des composés intermétalliques : Mo, Re, Ru, Rh, Pd.
- P.F. formant des carbures insolubles : Ba, Sr, La, Ce, Nd, Pr.
- P.F. formant des composés ioniques : Cs, I, Sb, Se.

La vitesse de gonflement due aux P.F. solides est de l'ordre de 0,9%/at.% fissionné $\angle 41 /$. Elle dépend fortement de l'état chimique sous lequel se trouve Ba et Cs notamment. En première approximation, cette valeur est indépendante de la température.

2.2.2. Produits de fission gazeux : Ce sont le Xénon et le Krypton. Les rendements de fission (R) et les compositions du mélange gazeux sont :

R = 30 %	}	en neutrons thermiques $\angle 9 /$
Kr/Xe = 14 %		
R = 25 %	}	en neutrons rapides $\angle 10 /$
Kr/Xe = 16 %		

Contrairement aux produits de fission solides, le comportement des gaz rares est fortement influencé par les conditions d'irradiation (température et vitesse de fission). Ce comportement sera examiné en détail dans le chapitre suivant.

2.2.3. Rôle de la composition des carbures : Les vitesses de gonflement des carbures stoechiométriques ou hyperstoechiométriques, dont la teneur en carbure supérieur n'excède pas 10 à 15 % sont sensiblement identiques à une température donnée, inférieure à 1600°C.

La phase métallique présente aux joints de grains, dans les carbures hypostoechiométriques, est préjudiciable au bon comportement de ce type de combustible. Cette phase gonfle beaucoup plus que le carbure et peut réagir avec les constituants de la gaine en formant des phases à bas point de fusion ($\approx 500^\circ\text{C}$).

Afin d'éviter ces inconvénients, les combustibles carbures irradiés sont en général légèrement hyperstoechiométriques (teneur en carbure supérieur variant de 3 à 10 %). Les poudres de carbures utilisées pour le frittage sont forcément contaminées par de l'oxygène et de l'azote. Il a été montré expérimentalement que des carbures frittés contenant jusqu'à 3000 p.p.m d'oxygène sont stables. Les proportions de C, N et O ne peuvent être en pratique rigoureusement ajustées pour obtenir un carbure monophasé. $M O_2$ excédentaire réagit au cours du frittage (1400 - 1600°C) avec MC et conduit à la formation d'une seconde phase $M_2 C_3$.

CHAPITRE II

LE COMPORTEMENT DES GAZ RARES DANS LES SOLIDES

1. La précipitation des gaz :

Les atomes de Xénon et de Krypton sont pratiquement insolubles dans les solides (solubilité de 10^{-9} à 10^{-11} at. gaz/at. $\langle 11 - 12 / \rangle$). Ils sursaturent alors rapidement la matrice et précipitent sous forme de bulles si la température est suffisante.

1.1. La formation et la croissance des bulles :

1.1.1. La germination des bulles : On suppose généralement $\langle 13 - 14 / \rangle$ que l'agglomération de trois atomes de gaz et de leur lacune associée est suffisante pour former un germe stable, dont le rayon sera de l'ordre de quelques angströms.

Les germes peuvent être répartis de façon uniforme dans la matrice (germination homogène) où se former sur des sites préférentiels, tels que les amas de défauts ponctuels et les boucles de dislocations formées sous irradiation, ou les dislocations préalablement existantes et les joints de grains (germination hétérogène).

1.1.2. La croissance des bulles : Plusieurs mécanismes peuvent contrôler la croissance des bulles :

a) l'apport d'atomes de gaz en solution et de lacunes. Ce mécanisme peut jouer un rôle en ce qui concerne le gonflement en pile lorsque le gaz

est remis en solution sous l'effet des fragments de fission (Cf. II.1.2.). Nous avons calculé (Tableau I), en fonction de la taille des bulles (r), le nombre de lacunes (N) et d'atomes de Xénon (m) qu'elles contiennent, ainsi que l'accroissement de volume ($\Delta V/V_0$) et la densité de bulles (ρ) pour une concentration de gaz de 10^{-3} at.gaz/at.dans de l'UC à 900°C . Nous avons considéré les hypothèses suivantes :

- les bulles sont à l'équilibre ; c'est-à-dire que la pression du gaz est équilibrée par la tension de surface du matériau :

$$P = \frac{2\gamma}{r}$$

avec P = pression du gaz
 γ = énergie de surface
 r = rayon de la bulle

- tout le gaz est précipité dans des bulles de même diamètre.

Nous avons :

$$N = \left(\frac{4}{3} \pi r^3 \right) \left(\frac{4}{a^3} \right)$$

a = paramètre de la maille (c.f.c)

$$m = \frac{8 \pi r^3 \gamma}{3 (kTr + 2 \gamma b)}$$

T = température
 k = constante de Boltzmann
 b = constante de Van der Waals pour le Xénon

Nous voyons que la précipitation d'un atome de gaz dans une bulle à l'équilibre doit s'accompagner de l'absorption de N/m lacunes, ce terme augmentant rapidement avec la taille des bulles.

D'autre part, le facteur prédominant du gonflement, pour une concentration donnée de gaz est la taille des bulles.

Ces résultats montrent que pour limiter le gonflement, il faut :

- soit maintenir une densité élevée de petites bulles,

- soit empêcher la migration des lacunes en irradiant à une température inférieure à la température de début de migration des lacunes d'uranium.

b) la redissolution des petites bulles au profit des plus grosses : le mécanisme est dans ce cas analogue à celui qui régit l'évolution des précipités dans un alliage. La vitesse de redissolution des plus petites bulles dépend en premier lieu de la solubilité et de la vitesse de diffusion du gaz. La force motrice dans le cas présent est induite par la diminution de l'énergie libre du gaz. La variation d'énergie libre par atome de gaz d'une bulle de rayon r_2 atteignant un rayon r_3 par dissolution d'une petite bulle voisine de rayon r_1 est $\angle 42 / :$

$$kT \ln \left(\frac{r_3^3}{r_1^3 + r_2^3} \right)$$

c) la rencontre des bulles : les bulles sont amenées à se rencontrer et à mettre en commun leurs atomes de gaz, qu'elles soient mobiles ou non. Leur mobilité est assurée par la diffusion de surface des atomes du solide. La migration peut être aléatoire (analogue au mouvement Brownien), dirigée sous l'effet d'un gradient thermique (en pile) ou provoquée par la tension de ligne des dislocations (cas des recuits en conditions isothermes).

La rencontre de deux bulles à l'équilibre de volume V_1 et V_2 donne naissance à une bulle dont le volume V_3 à l'équilibre peut être calculé :

$$\frac{2\gamma}{r_1} \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_1^3 + \frac{2\gamma}{r_2} \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_2^3 = \frac{2\gamma}{r_3} \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r_3^3$$

soit après simplification : $r_1^2 + r_2^2 = r_3^2$

Il y a donc conservation de la surface et V_3 est alors égal à :

$$V_3 = \frac{4}{3} \pi \left(r_1^2 + r_2^2 \right)^{3/2}$$

On voit que V_3 est supérieur à la somme des volumes des bulles initiales, ce qui suppose une absorption de lacunes qui conduit à une augmentation du gonflement. D'autre part, cette augmentation de la taille des bulles accroît la probabilité de rencontre et le processus ne peut que s'accélérer.

La formation d'un réseau de bulles interconnectées ("breakaway swelling") facilite le dégagement du gaz hors du matériau. L'interconnexion dans tout le volume d'un réseau régulier de bulles nécessiterait pour se faire un gonflement important. En fait, la répartition essentiellement intergranulaire des grosses bulles dans bon nombre de matériaux, dont le carbure, conduit à l'interconnexion pour des valeurs modérées du gonflement ($G \ll 25\%$).

Le mécanisme de rencontre des bulles apparaît le plus important et a donné lieu à de nombreuses études. R.S. Barnes [15] / notamment a élaboré une théorie du gonflement au cours de traitements thermiques isothermes après irradiation, à partir des mécanismes de migration mis en évidence par l'observation directe des bulles au microscope électronique. Dans son modèle, il suppose que :

- tout le gaz est précipité dans des bulles sphériques de même taille et à l'équilibre,
- la migration des bulles est contrôlée par la diffusion de surface
- la force motrice est reliée à la tension de ligne des dislocations.

Il met en évidence deux stades différents de gonflement et définit les limites des domaines correspondants :

Gonflement normal : G est donné par la relation :

$$G = A.T. a_o \cdot \left(\frac{m}{\gamma} \right)^{5/4} \cdot \left(D_s.F.t \right)^{1/4} \quad (1)$$

avec :

A = constante

T = température de recuit

a_o = paramètre de la maille

m = concentration du gaz

D_s = coefficient de diffusion de surface

F = force agissant sur les bulles

t = temps de recuit.

Gonflement exagéré : (breakaway-swelling) : il correspond à une accélération du gonflement se traduisant par un écart à la loi théorique (1), prévu pour G = 10 %. L'interprétation du modèle montre que pour G = 33 % toutes les bulles sont virtuellement en contact. Le gaz peut alors s'échapper par les canaux de bulles interconnectées entraînant ainsi une forte augmentation de la fraction de gaz dégagés, de la densité hydrostatique, et éventuellement, de la densité géométrique dans le cas d'une redensification.

1.2. L'instabilité des bulles sous irradiation :

Des expériences ont montré que des bulles de gaz formées dans un combustible disparaissent par réirradiation à plus basse température [16, 17].

Le gaz initialement contenu dans les bulles est mis artificiellement en solution par un processus appelé "resolution". Ce processus se produit principalement sous l'effet des deux mécanismes suivants :

- collision directe entre une bulle et un fragment de fission ou un atome du réseau déplacé par une collision en cascade.
- "sputtering": déplacement d'une partie du matériau vaporisé à la surface de la bulle sur le trajet d'un fragment de fission.

La resolution est caractérisée par un paramètre "b", qui est la probabilité par seconde de remise en solution d'un atome de gaz :

$$b = \frac{1}{N} \cdot \frac{dN}{dt} \quad (\text{sec.}^{-1}) \quad N = \text{nombre d'atomes de gaz dans la bulle.}$$

$$2,6 \times 10^{-5} \leq b \leq 1,2 \times 10^{-4} \text{ sec.}^{-1} \text{ à } 200^{\circ}\text{C} \quad \angle 16 /$$

La confrontation des valeurs théoriques $\angle 18 /$ et expérimentales de "b" dans les oxydes montre que la resolution est contrôlée par le processus de collisions à basse température et en grande partie, par le processus de "sputtering" à haute température. L'effet des contraintes thermoélastiques créées lors du passage des fragments de fission étant moins important dans les carbures que dans les oxydes du fait de leur meilleure conductibilité thermique, le paramètre "b" est vraisemblablement plus faible pour les carbures irradiés à $T > 900^{\circ}\text{C}$ environ.

Le processus de resolution conduit à freiner le gonflement des combustibles soit en maintenant les atomes de gaz en solution (on peut atteindre une solubilité dynamique de 2×10^{-3} at. gaz/at.) soit en ralentissant la croissance des bulles.

2 - Le dégagement des gaz de fission :

2.1. Les mécanismes :

Les produits de fission gazeux peuvent se dégager des

combustibles par plusieurs mécanismes parmi lesquels, mis à part l'interconnexion des bulles, seuls le recul et la diffusion conduisent à des dégagements appréciables.

2.1.1. Le recul : la fraction de gaz dégagés par recul (F_R) est donnée par la formule suivante :

$$F_R = \frac{RS}{4} \cdot \frac{\varnothing M}{\varnothing m}$$

où : R = distance de recul

S = rapport surface sur volume de l'élément combustible

$\frac{\varnothing M}{\varnothing m}$ = rapport flux maximum sur flux moyen dans l'élément combustible .

L'énergie d'un fragment de fission est suffisante pour causer un recul d'une portée de 5 à 9 mg/cm² suivant sa masse atomique. Dans UC des calculs effectués à partir de résultats de dégagements de Kr 85 par recul, donnent une portée de recul de 7,5 mg/cm² en prenant une masse atomique moyenne du fragment de fission de 110 \angle 19 /. Ce qui donne, pour une pastille de carbure de densité 13,6 g/cm³, de longueur 10 mm et de diamètre 6 mm :

$$- R = \frac{7,5 \times 10^{-3}}{13,6} = 5,5 \times 10^{-4} \text{ cm}$$

$$- F_R = 0,12 \% \quad (\text{pour } \varnothing M / \varnothing m = 1)$$

2.1.2. La diffusion : La diffusion dans les solides s'effectue principalement par un mécanisme lacunaire. Comme l'irradiation conduit à la formation de ce type de défaut, un rapport étroit entre diffusion et irradiation doit être envisagé.

Sous irradiation, la concentration totale de lacunes est égale à la somme de la concentration de lacunes à l'équilibre thermodynamique (C_o) et de la concentration après recombinaison des lacunes dues à l'irradiation ($C'(\varnothing)$). Le coefficient de diffusion, D , s'exprime alors en fonction de la température par la relation :

$$D = A (C_o + C'(\varnothing)) \exp. \left(- \frac{E_m}{RT} \right)$$

avec : $C_o = A' \exp. \left(- \frac{E_f}{RT} \right)$

E_m = énergie de migration des lacunes

E_f = énergie de formation des lacunes

A, A' = constantes.

Les lacunes dues à l'irradiation sont annihilées en des puits fixes (joints de grains, dislocations..) suivant une cinétique du premier ordre qui se traduit par une décroissance exponentielle du nombre de défauts :

$$C'(\varnothing) = B(\varnothing) \cdot \exp. \left(\frac{E_m}{RT} \right)$$

où $B(\varnothing)$ est fonction du flux de neutrons.

Le coefficient de diffusion est alors :

$$D = A'' \underbrace{\exp. \left(- \frac{E_m + E_f}{RT} \right)}_{D_T} + \underbrace{B'(\varnothing)}_{D_a}$$

D_T = coefficient de diffusion thermique

D_a = coefficient de diffusion activée

Suivant la température d'irradiation, nous aurons :

- à haute température : les lacunes dues à l'irradiation étant recuites rapidement : $C_0 \gg C'(\varnothing)$ d'où $D = D_T$
- à basse température : $C'(\varnothing) \gg C_0$, le coefficient de diffusion est fortement augmenté par l'irradiation $D = D_a$
- aux températures intermédiaires : $D = D_T + D_a$

Brinkman [20] a calculé le coefficient d'auto-diffusion activée dans le cas de l'uranium :

$$D_a = 1,5 \times 10^{-31} \cdot V_f$$

où : $V_f =$ vitesse de fission (fission. $\text{cm}^{-3} \cdot \text{sec.}^{-1}$)

Cette valeur calculée est en bon accord avec les résultats expérimentaux de Bleiberg [21] / Obtenus avec des alliages U - 9% Mo et par Matzke sur UO_2 et UC [43] /.

Comme la diffusion activée par l'irradiation est, jusqu'à un certain point, indépendante de la nature de l'atome diffusant, on peut penser que la relation de Brinkman s'applique aux produits de fission présentant un comportement proche de celui de l'uranium, ce qui est le cas pour les gaz de fission.

Ainsi, pour un combustible carbure irradié dans un flux de neutrons tel que $V_f = 6 \times 10^{13}$ fissions. $\text{cm}^{-3} \cdot \text{sec.}^{-1}$, le coefficient de diffusion activée sera $D_a \approx 10^{-17} \text{cm}^2 \cdot \text{sec.}^{-1}$, ce qui correspond d'après les résultats expérimentaux de [31] / à la valeur du coefficient de diffusion thermique à 800°C .

2.2. Calcul de la fraction de gaz dégagés par diffusion :

2.2.1. Le modèle de diffusion : Booth [22] a montré que la fraction de gaz dégagés (F) pour une température et un temps donnés est indépendante de la taille des échantillons frittés. Sur la base de ce résultat, il adopte un modèle simple de diffusion dans lequel le matériau fritté est formé par l'agglomération de particules sphériques uniformes de rayon "a". Chaque sphère est supposée être à une température uniforme fonction de sa position dans l'échantillon et être indépendante par rapport aux autres.

2.2.2. Les calculs : les calculs de la fraction de gaz dégagés en fonction de la température et du temps sont détaillés dans l'annexe I.

Sous irradiation F est donné par la relation :

$$F = 4 \sqrt{\frac{Dt}{\pi a^2}} \quad 0,1 < F < 0,7$$

et au cours de recuits isothermes après irradiation par la relation :

$$F = 6 \sqrt{\frac{Dt}{\pi a^2}} \quad 0,1 < F < 0,7$$

A partir des valeurs expérimentales de F, on ne peut évaluer D, si l'on ne connaît pas le rayon de la "sphère équivalente". Par contre, il est possible de déterminer la valeur du paramètre composé D' ou coefficient de diffusion apparent : $D' = \frac{D}{a^2}$. Il est calculé directement à partir de la pente des droites F en fonction de \sqrt{t} .

B/ ETUDE REALISEE

Buts de l'étude

L'étude que nous avons entreprise avait pour buts :

- de déterminer la température de migration des lacunes d'uranium, celles-ci contrôlant la coalescence des bulles,
- de relier le gonflement à la taille et à la répartition des bulles,
- de vérifier le modèle de Barnes en recherchant les limites des deux stades de gonflement annoncés.

Nous avons donc mis au point une irradiation de carbure à basse température afin d'obtenir une solution sursaturée de gaz dans la matrice. Nous avons effectué des séries de traitements thermiques et suivi les variations du gonflement à partir des mesures de densité des pastilles.

Une autre irradiation, réalisée à une température plus élevée nous a permis de définir l'influence du taux de combustion et de la température sur le gonflement en pile.

Dans les rappels théoriques précédents sur le dégagement du gaz en pile est apparu un coefficient de diffusion activée qui n'était fonction que du flux de neutrons. Des mesures de rétention de gaz nous permettront de contrôler le caractère athermique de la diffusion activée. Nous analyserons d'autre part les dégagements de gaz en pile pour voir si la relation de Brinkman, valable pour l'uranium, peut être appliquée au cas des gaz de fission.

CHAPITRE I

IRRADIATIONS ET TECHNIQUES UTILISEES

1 - Les irradiations :

1.1. Irradiation "Ursula" :

Nous avons étudié et mis au point une capsule pour irradier en neutrons thermiques de l'UC à une température à coeur de l'ordre de 500°C.

Nous avons cherché à minimiser le creusement de flux dans le combustible en irradiant des pastilles de petit diamètre et faiblement enrichies.

1.1.1. Nature et forme de l'élément combustible : Le combustible irradié est du monocarbure d'uranium ($UC_{1,0}$), enrichi à 2,5 % en poids d' ^{235}U . Il est obtenu par carburation de l'hydrure d'uranium à 1400°C, suivi d'un frittage à 1600°C $\angle 23 /$.

Composition du carbure :

- UC : à 4,8 % en poids de C
- O₂ : 600 p.p.m.
- N₂ : 1500 p.p.m.

Les caractéristiques des pastilles sont les suivantes :

- diamètre : $\varnothing 3,97 \pm 0,03$ mm
- densité hydrostatique : $d = 12,72 \text{ g/cm}^3$
(93,5 % de la densité théorique)

L'aiguille comporte deux colonnes de combustible séparées par un bouchon intermédiaire de centrage à ailettes. Chaque colonne est terminée par deux pastilles isolantes d'UO₂ naturel et est maintenue en place par un ressort de compression. Le gaz de remplissage est de l'hélium.

Caractéristiques de l'aiguille :

- gaine en acier inoxydable (type 316) : $\varnothing = 4,13 \times 4,83$ mm
- longueur d'une colonne fissile : 240 mm
- longueur d'un vase d'expansion : 18,5 mm
- longueur totale de l'aiguille : 593 mm

1.1.2. Dispositif d'irradiation (Figures 4 et 5) : l'aiguille centrée dans un tube ajouré, permettant le positionnement de six thermocouples et d'un moniteur cobalt, est placée dans un conteneur en acier inoxydable ($\varnothing 14 \times 16$) rempli de Na K. Un second conteneur ($\varnothing 20 \times 22$), assure la double étanchéité avec l'eau de la pile et est séparé du précédent par un deuxième film de Na K pressurisé à 5 kg/cm^2 . Une prise de pression, fermée au cours du montage et de la coulée du Na K, est raccordée avant la mise en pile à un circuit de mesure comportant un manomètre à contact haut et bas, permettant de déclencher une alarme en cas de rupture d'étanchéité d'un conteneur.

1.1.3. Paramètres de l'irradiation : Le dispositif a été irradié dans la pile EL 3 à Saclay pendant une durée équivalente à 65 jours à pleine puissance.

- températures : nous avons calculé la répartition radiale des températures dans la capsule pour différentes valeurs de la puissance linéaire (annexe II). Les résultats sont consignés dans le tableau II et sur la figure 6. Les températures moyennes au niveau des six thermocouples sont déterminées à partir de l'enregistrement effectué au cours de l'irradiation (Figure 7) : Le dispositif n'ayant pas pu être remis au même emplacement pour le deuxième cycle (30.10.70 - 7.12.70) s'est trouvé plus éloigné du coeur de la pile ; ceci explique les températures plus faibles enregistrées.

- taux de combustion (Tableau III) : ils sont évalués de deux façons différentes :

- par la mesure de l'activation du moniteur au cobalt
- à partir du bilan thermique : à chaque température moyenne déterminée sur la figure 7 correspond d'après les calculs détaillés à l'annexe II une puissance linéaire moyenne (W_m). τ est alors donné par :

$$\tau \quad (\text{MWj/t}) = \frac{W_m \cdot t}{r^2 \cdot d}$$

où t (jours) = nombre de jours équivalents à pleine puissance,
 r (cm) = rayon des pastilles,
 d (g/cm^3) = densité du combustible.

Le tableau suivant regroupe les principaux paramètres de l'irradiation pour le crayon inférieur U 12 :

	1er cycle	2ème cycle
Puissance linéaire	148 W/cm	116 W/cm
Température centrale	580 ° C	495 ° C
Taux de combustion	5100 MWj/t ; 0,58 at % fissionné	
Volume total de gaz formé (Xe + Kr)	0,157 cm ³ /g.d'UC	

1.2. Irradiation "Camille" :

Dans le cadre des études sur les carbures mixtes d'uranium et de plutonium menées au CEA, une irradiation en neutrons rapides a été réalisée dans le réacteur français Rapsodie.

Une série de 10 éléments combustibles à base de (U_{0,8} Pu_{0,2}) C a été irradiée. C'est la première irradiation française de carbures en neutrons rapides ; elle vient après plusieurs expériences en neutrons thermiques et épithermiques [24 - 25 / .

1.2.1. Nature et forme des éléments combustibles :

Le combustible est du monocarbure mixte d'uranium et de plutonium obtenu par la voie de l'hydrure [23 / . Le rapport Pu/ (U + Pu) est de 20 at. %, et l'uranium est enrichi à 93 % en ²³⁵U. Cet enrichissement important est nécessité par la petitesse des sections efficaces de fission en neutrons rapides.

Teneur en impuretés :

- O₂ = 200 à 550 p.p.m .
- N₂ = 600 à 1000 p.p.m.
- M₂C₃ < 3 %

Caractéristiques des pastilles :

- diamètre : $\varnothing = 6,62 \pm 0,02$ mm
- densité hydrostatique : 92,5 à 95,2 % de d.th.
- porosité ouverte : 0,2 à 0,8 %
- fermée : 4,6 à 6,7 %

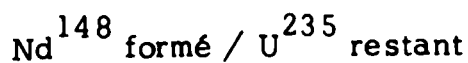
Caractéristiques des aiguilles :

- gaine en acier inoxydable (type 316) $\varnothing = 7,38 \times 8,28$ mm
- longueur totale L = 779 mm
- longueur de la colonne fissile l = 340 mm
- jeu carbure gaine e = 0,75 mm sur le diamètre

L'échange thermique carbure-gaine est assuré par l'intermédiaire d'un joint sodium.

1.2.2. Paramètres de l'irradiation : Les températures de surface et de coeur et les taux de combustion ont été calculés à partir des données thermiques et neutroniques communiquées par 26 /.

Les profils et valeurs théoriques du taux de combustion le long des aiguilles irradiées ont été contrôlés d'une part par la mesure de l'activité γ totale par défilement (γ scanning) et d'autre part par la mesure du rapport atomique :



effectuée sur cinq échantillons d'une même aiguille.

Nous avons reporté (Tableau IV , Figure 8) les variations du taux de combustion et des températures de surface et de coeur le long des deux aiguilles que nous avons principalement examinées.

2 - Les examens après irradiation - Techniques utilisées :

Le dispositif Ursula et les aiguilles Camille ont été transférés, après irradiation, dans les cellules blindées du Laboratoire de Radiométallurgie de la Section du Plutonium Irradié à Fontenay-aux-Roses où nous avons effectué les examens suivants (Tableau V) :

- mesure du volume de gaz de fission dégagés
- mesure de densité hydrostatique
- traitements thermiques isothermes et isochrones
- micrographie optique

Pour l'expérience Ursula, il a fallu d'abord ouvrir le dispositif et détruire le Na K avant de récupérer l'élément combustible.

La récupération des pastilles des aiguilles Camille, qui étaient gainées avec un joint sodium, a été faite après distillation du sodium sous vide primaire à 500°C pendant une heure. Ce traitement permet d'obtenir des pastilles exemptes de toute trace de sodium.

2.1. Mesure du volume de gaz de fission dégagés pendant l'irradiation :

Les aiguilles sont percées au niveau des vases d'expansion dans un dispositif sous vide primaire dynamique. Les gaz prélevés sont comprimés dans une enceinte de volume connu, par l'intermédiaire d'une pompe Toepler. Le volume des gaz est calculé à partir de la mesure de la variation de pression.

Une partie de ce mélange gazeux supposé homogène est ensuite analysée au spectromètre de masse pour déterminer la

quantité de Xénon et de Krypton contenus ainsi que les rapports entre les différents isotopes présents, avec une erreur de 1 %.

2.2. Mesure de densité hydrostatique :

La densité hydrostatique est utilisée pour l'évaluation du gonflement. Les échantillons sont dégazés et immergés sous vide primaire dans du bromobenzène, liquide de mesure.

Le gonflement est déterminé par la comparaison des densités avant et après irradiation :

$$G = \frac{\Delta V}{V_o} = \frac{d_o - d_{\text{irradié}}}{d_{\text{irradié}}}$$

Dans ce cas, on suppose que la porosité, essentiellement fermée, n'évolue pas au cours de l'irradiation. En fait, si aucun frittage thermique n'est à craindre à cause de la faible température d'irradiation, par contre les fragments de fission peuvent détruire la fine porosité au même titre que les petites bulles et modifier ainsi la densité du combustible.

Les pesées dans l'air et dans le liquide de mesure sont faites sur une balance télécommandée à distance. La mise en place des nacelles porte-échantillon pour les pesées et les dégazages est effectuée au télémanipulateur. Les difficultés que présentent ces différentes opérations ne permettent de mesurer que deux densités au maximum par jour.

L'erreur sur la mesure de densité est respectivement de 1 % et 0,5 % pour les échantillons d'Ursula et de Camille. L'erreur relative sur le gonflement est :

$$\frac{\Delta G}{G} = \frac{\Delta d_o}{d_o - d_i} + \frac{\Delta d_i}{d_o - d_i} + \frac{\Delta d_i}{d_i}$$

ainsi pour :

$$\begin{aligned} d_o &= 12,65 \text{ g/cm}^3 & \frac{\Delta d}{d} &= 0,5 \% \\ d_i &= 12,40 \text{ g/cm}^3 \end{aligned}$$

nous avons :

$$G = 2 \% \quad \text{et} \quad \frac{\Delta G}{G} = 50 \%$$

et pour :

$$\begin{aligned} d_o &= 12,65 \text{ g/cm}^3 & \frac{\Delta d}{d} &= 0,5 \% \\ d_i &= 11,50 \text{ g/cm}^3 \end{aligned}$$

nous avons :

$$G = 10 \% \quad \text{et} \quad \frac{\Delta G}{G} = 11 \%$$

On voit que l'erreur relative sur G est importante pour de faibles gonflements (erreur systématique).

2.3. Traitements thermiques, prélèvement des gaz de fission :

Les traitements thermiques sont effectués dans un four à haute fréquence implanté dans une cellule (Figure 9). Les échantillons sont placés dans des creusets en tungstène. La température atteinte est estimée à partir de la puissance fournie par le générateur H.F. Une relation puissance-température a été préalablement établie à partir de points de fusion de métaux purs. L'erreur sur la température est estimée à ± 20 °C.

Ce four est relié à une rampe d'extraction de gaz montée dans une boîte à gant extérieure à la cellule. Cette installation comporte un groupe de pompage couplé à une pompe Toepler. Au cours

des traitements thermiques, les gaz dégagés sont soutirés et stockés dans une burette de $2,5 \text{ cm}^3$, puis comprimés dans des ampoules aux fins d'analyses qualitative, quantitative et isotopique au spectromètre de masse.

Les creusets de tungstène utilisés limitent les dimensions des pastilles à un diamètre et une longueur de 10 et 15 mm respectivement. La récupération de la totalité des gaz retenus dans les combustibles est faite par la fusion complète des échantillons.

Afin de limiter la vaporisation et la projection de matière dans l'enceinte du four, ces fusions ne sont effectuées que sur des lames de 0,4 g au maximum.

2.4. Micrographies optiques :

Les surfaces examinées sont des coupes diamétrales. Les échantillons enrobés dans des moules métalliques sont polis mécaniquement sous alcool, sur papier abrasif, puis sur feutre alimenté en pâte diamantée de 1μ et $0,5 \mu$. Après lavage et séchage, une attaque par pulvérisation cathodique permet de révéler la structure du combustible.

Paramètre de l'attaque :

- pression d'argon	:	$2,5 \times 10^{-2}$ Torr
- tension	:	1000 à 1500 volts
- courant	:	3 à 4 mA
- temps	:	2 à 3 heures

CHAPITRE II

ETUDE DU GONFLEMENT

1 - Résultats :

1.1. Gonflement sous irradiation :

a/ Nous avons mesuré les densités hydrostatiques de 18 pastilles entières prélevées dans deux aiguilles Camille :

- 13 mesures sur l'aiguille n° 22
- 5 mesures sur l'aiguille n° 23

Les températures centrales (T_c) et les taux de combustion (τ) correspondants sont compris entre :

$$710^\circ\text{C} < T_c < 975^\circ\text{C}$$

$$1,7 \text{ at. \% fissionné} < \tau < 3 \text{ at. \% fissionné}$$

Nous avons reporté les variations du gonflement (G) de T_c et de τ le long de l'aiguille n°22 (Figure 10) et toutes les valeurs mesurées de G en fonction de τ (Figure 11). Ces courbes montrent que le gonflement est :

- indépendant de la température d'irradiation (gonflement athermique)
- proportionnel au taux de combustion.

L'ensemble des points expérimentaux de la figure 11 est traité par la méthode des moindres carrés. L'équation de la droite ainsi obtenue est :

$$G = 1,45 \cdot \tau - 1,25$$

La valeur $G = - 1,25 \%$ pour $\tau = 0$ peut s'expliquer par une accommodation partielle du gonflement dans la porosité de frittage, par une augmentation de la fraction de porosité ouverte due à la fissuration des échantillons sous irradiation et aussi par la disparition d'une fine porosité due à l'action des fragments de fission ("frittage en pile"). Le taux de gonflement est de $1,45 \%$ /at. % fissionné.

b/ Les mesures de densité effectuées sur 15 pastilles entières du crayon inférieur Ursula conduisent à un taux de gonflement de $1,05 \%$ /at. % fissionné, inférieur à la valeur trouvée pour les échantillons Camille.

1.2. Gonflement par recuits après irradiation :

Nous avons suivi l'évolution du gonflement au cours de traitements thermiques isochrones ($t = 6,5$ heures) pour des températures comprises entre 700 et 2100°C , chaque recuit étant fait sur un échantillon brut d'irradiation.

Pour que les concentrations en gaz de fission soient sensiblement les mêmes dans les échantillons d'une même irradiation, nous avons prélevé des pastilles d'UC dans le crayon inférieur (U 12) le long duquel le taux de combustion est constant et des pastilles d'(U, Pu) C dont le taux de combustion est compris entre $2,2$ et $2,4$ at. % fissionné.

Le gonflement a été calculé en prenant comme référence la densité après irradiation.

1.2.1. Expérience Ursula (Figure 12) : Le gonflement n'apparaît qu'à partir de 800°C. A 1600°C (G = 8 %) la courbe présente un point d'inflexion, G augmentant ensuite rapidement avec la température.

La structure des échantillons recuits a été observée par microscopie optique (Figure 14). La taille des grains et la répartition de la porosité sont homogènes le long d'un rayon.

- T = 1400°C (G = 6,9 %) : les bulles ($r \approx 0,2 \mu$) sont visibles sur les joints et les sous joints de grains.
- T = 1800°C (G = 9,7 %) : les bulles ($r \approx 0,4 \mu$) sont visibles sur toute la surface des grains. Celles situées sur les joints de grains ont atteint un rayon de 2μ environ et sont principalement présentes aux joints triples.
- T = 2100°C (G = 16,5 %) : on note un important réseau de bulles interconnectées aux joints de grains.

1.2.2. Expérience Camille (Figure 15) : de 1000 à 1300°C le gonflement croît rapidement mais reste plus faible que pour les échantillons en UC malgré une concentration de gaz de fission quatre fois plus élevée.

Nous avons mesuré sur des macrographies l'accroissement de diamètre subi par les échantillons recuits à 1440 et 1600°C, ce qui permet de calculer leur gonflement géométrique supposé isotrope :

$$\frac{\Delta V}{V_0} = 3 \frac{\Delta \phi}{\phi_0}$$

Nous trouvons des valeurs de G de 30 % et 9,5 % au lieu de 3,5 % et -3% par la mesure de densité hydrostatique à 1440°C et 1600°C respectivement. Cette différence s'explique par un accroissement de la porosité ouverte, dû à la présence d'un important réseau de microfissures et de bulles interconnectées (Figures 16 et 17). Dans ces conditions, on ne peut plus évaluer le gonflement à partir des mesures de densités hydrostatiques ; c'est pourquoi nous avons prolongé la courbe dans la zone des températures élevées en utilisant les valeurs de densités géométriques.

2 - Interprétations :

2.1. Gonflement sous irradiation :

Nous avons déterminé les formes sous lesquelles se trouvent les gaz de fission à la fin des irradiations à partir de données théoriques et des taux de gonflements expérimentaux.

Whapham $\angle 27 /$ a étudié l'influence du processus de résolution sur le comportement des gaz de fission. Il a calculé la fraction de gaz précipité dans UO_2 en fonction de la température et du temps d'irradiation. Ces abaques peuvent être utilisées pour les carbures en modifiant les échelles de température d'un facteur égal au rapport des températures de fusion d' UO_2 et d'UC. On en déduit que :

- le gaz est en solution sursaturée dans le combustible Ursula,
- dans le combustible Camille le gaz a commencé de précipiter dans les régions où la température est supérieure à 700°C, pour

atteindre 90 % environ de gaz précipité à 950°C.

Harrison [28] / montre que jusqu'à un taux de combustion de 1 at. % fissionné et pour $T < 700^\circ\text{C}$ le gaz reste en solution dans la matrice d'UC, la vitesse de gonflement calculée est 1,4 %/at % fissionné. Cette valeur est surestimée car il a supposé que les P.F. solides restent dans l'état élémentaire et ne se recombinent pas avec U ou C.

Nous avons calculé la vitesse de gonflement des carbures en supposant les gaz de fission restés en solution. Les données initiales sont :

P.F. solides : $V_S = 0,9 \text{ \% / at. \% fissionné}$

P.F. gazeux : rayon atomique de X_e en solution $r = 1,9 \text{ \AA}$

rayon atomique de Kr en solution $r = 1,7 \text{ \AA}$

rapport Kr/ X_e , rendements de fission (I,2.2.2.).

soit :

$V_G = 0,28 \text{ \% / at. \% fissionné en neutrons thermiques}$

$V_G = 0,23 \text{ \% / at. \% fissionné en neutrons rapides}$

ce qui donne en définitive :

$V = 1,18 \text{ \% / at. \% fissionné en neutrons thermiques}$

$V = 1,13 \text{ \% / at. \% fissionné en neutrons rapides}$

En comparant ces valeurs théoriques aux résultats expérimentaux ;

Ursula	$V = 1,05 \text{ \%/at. \% fissionné}$
Camille	$V = 1,45 \text{ \%/at. \% fissionné}$

Nous voyons qu'il existe un bon accord pour Ursula alors que le résultat de Camille est plus élevé. Nous en concluons que conformément aux prévisions théoriques, les gaz de fission sont en solution dans les échantillons Ursula et en partie précipités dans les échantillons Camille.

2.2. Gonflement par recuits après irradiation :

2.2.1. Expérience Ursula : La température de seuil du gonflement ($\approx 800^\circ\text{C}$) est en bon accord avec la température de début de migration des lacunes d'uranium dans UC ; celles-ci contrôlant la coalescence des bulles. La courbe $G = f(T)$ (Figure 12) a été traitée suivant le modèle de Barnes :

$$G \propto T D^{1/4} \quad \text{soit } G \propto T \exp. \left(-\frac{1}{4T} \right) \equiv \exp. \left(-\frac{1}{4T} \right)$$

Nous mettons en évidence (Figure 13) les deux stades du gonflement ("normal" et "exagéré"). Le changement de cinétique se situe à $G = 8 \%$ ($T = 1600^\circ\text{C}$) soit pour une valeur du gonflement proche de celle prévue par le modèle.

2.2.2. Expérience Camille : La concentration de gaz de fission, étant cinq fois plus élevée dans les échantillons Camille et intervenant à la puissance $5/4$ dans (1), entraîne l'apparition du breakaway swelling à des températures plus basses ($\approx 1300^\circ\text{C}$). Le maximum de gonflement mesuré (30 %) est en bon accord avec la valeur théorique de Barnes et les résultats expéri-

mentaux de $\angle 29 - 30 /$.

Nous avons porté sur la figure 15 la fraction de gaz dégagé au cours des recuits isochrones. Conformément aux hypothèses, F augmente rapidement dès le début de l'interconnexion pour atteindre 80 % au début de la redensification ($\pm 1600^{\circ}\text{C}$).

CHAPITRE III

DEGAGEMENT DES GAZ DE FISSION

1 - Résultats :

1.1. Gaz dégagés pendant l'irradiation :

Pour l'expérience Ursula réalisée en neutrons thermiques, les volumes de Xénon et de Krypton dégagés sont rapportés à la quantité totale de gaz formé pendant l'irradiation calculée à partir du taux de combustion et des rendements de fission. Les rendements de fission en neutrons rapides étant mal connus, nous avons mesuré directement la quantité de gaz retenu dans les combustibles Camille par fusion complète de plusieurs échantillons situés à différents niveaux d'une aiguille.

Les fractions de gaz dégagés sont :

Ursula :	F = 0,26 %
Camille : aiguille n° 22	F = 1,85 %
aiguille n° 23	F = 3,20 %

Nous avons mesuré, d'autre part, la quantité de gaz retenu dans trois lames minces prélevées à différents niveaux d'une même aiguille de l'irradiation Camille. Afin de différencier l'effet du taux de combustion de celui de la température, nous avons choisi des lames dont les paramètres sont donnés dans le tableau VI.

1.2. Gaz dégagés au cours de recuits isothermes après irradiation :

Les traitements thermiques ont été effectués en plusieurs séquences de sept heures environ chacune. La figure (18) montrent l'évolution de la fraction de gaz dégagés en fonction du temps à différentes températures.

Au cours du premier recuit le dégagement est rapide puis diminue progressivement pour varier linéairement en fonction de la racine carrée du temps. Pour les traitements thermiques suivants à la même température, on n'observe plus de dégagement rapide et dès le début F suit strictement la variation (en $t^{1/2}$) atteinte à la fin du premier cyclage thermique. Ainsi l'anomalie de dégagement ne peut être attribuée au gradient de température résultant du chauffage rapide des échantillons dans le four à haute fréquence.

Le tableau VII montre que le rapport Kr/Xe et la composition isotopique du mélange gazeux sont indépendants de la température et du temps de recuit. Nous pouvons donc calculer les coefficients de diffusion à partir de la fraction totale de gaz dégagé, sans faire de distinction entre les différents Xe et Kr.

Les pentes des parties linéaires des courbes $F = f(\sqrt{t})$ (figures 19) donnent directement les valeurs des coefficients de diffusion apparents (annexe I) :

$$D' = \frac{\pi}{36} \cdot \left(\frac{dF}{d\sqrt{t}} \right)^2$$

L'erreur sur D' est estimée à 10 % pour Ursula et 14 % pour Camille.

Ces valeurs de D' sont portées sous forme d'un diagramme d'Arrhénius (Figure 20) . Les énergies d'activation déduites sont :

$$\text{Ursula : } E = 70 \pm 2 \text{ Kcal/mole}$$

$$\text{Camille : } E = 45 \pm 7 \text{ Kcal/mole}$$

Sur la figure 21 nous avons porté les résultats de $\Delta 31, 33$ / relatifs à la variation du coefficient de diffusion vrai du Xénon et du Krypton dans le monocarbure d'uranium. Les énergies d'activation sont en bon accord avec celle mesurée à partir des échantillons Ursula, dont la courbe $\log. D' = f(1/T)$ s'inscrit comme la moyenne de celles des références précédentes pour $a^2 = 10^{-5} \text{ cm}^2$.

2 - Interprétations :

2.1. Gaz dégagés pendant l'irradiation :

La relation de Brinkman nous permet de calculer, à un ordre de grandeur près, les coefficients de diffusion activée apparents, avec $a^2 = 10^{-5} \text{ cm}^2$.

$$\text{Nous avons pour Ursula : } V_f = 3,05 \times 10^{13} \text{ fissions.cm}^{-3} \cdot \text{sec}^{-1}$$

$$4,6 \times 10^{-12} < D'_a < 4,6 \times 10^{-14} \text{ sec}^{-1}$$

et pour Camille (aiguille 22) : $V_f = 6,2 \times 10^{13} \text{ fissions.cm}^{-3} \cdot \text{sec}^{-1}$
(valeur moyenne tenant compte de la variation du flux)

$$9,3 \times 10^{-12} < D'_a < 9,3 \times 10^{-14} \text{ sec}^{-1}$$

Dans le cas de l'irradiation Ursula les valeurs maximale et minimale de D'_a correspondent aux coefficients de diffusion thermique apparents (D'_T) à 1100 et 900°C. Ces températures étant très supérieures à la température centrale au cours de l'irradiation, $D'_{T \text{ irrad.}}$ est négligeable devant D'_a . Pour les aiguilles Camille, la valeur minimale de D'_a correspond à D'_T pour $T = 1000^\circ\text{C}$.

Dans ce cas, le coefficient de diffusion thermique apparent correspondant à la température centrale maximale, n'est pas négligeable et F_{Tc} est calculé avec $D' = D'_T + D'_a$.

Les valeurs mesurées et calculées (relations.. (3) (4)) de la fraction de gaz dégagées sont rassemblées dans le tableau suivant :

Irradiation	h° aigu.	F (%) recul	F (%) D'_T	F (%) ($D'_T + D'_a$)	F total (%)	
					calculé	mesuré
URSULA	U.12	0,14	0,004	0,9 > F > 0,09	1,04 > F > 0,23	0,26
CAMILLE	22	0,12	0,02	2,5 > F > 0,25	2,6 > F > 0,37	1,85
	23	0,12	0,04	2,7 > F > 0,28	2,8 > F > 0,4	3,2

Etant donné que "a" est connu à un ordre de grandeur près, on note un bon accord entre les valeurs théoriques et expérimentales.

Ces résultats montrent que, dans le cas d'un combustible carbure irradié à une température maximale de 1000°C environ, $F(D'_T)$ est pratiquement négligeable et le dégagement des gaz de fission

en pile est contrôlé par la diffusion activée. La fraction F de gaz dégagés est indépendante de la température mais dépend seulement du taux de combustion pour une vitesse de fission donnée. Ainsi, les mesures de gaz retenu effectuées sur les combustibles Camille (tableau VI) montrent bien que la valeur de F (retenu) n'est pas affectée par la température centrale mais diminue lorsque le taux de combustion croît.

2.2. Gaz dégagés au cours des recuits isothermes après irradiation :

L'anomalie de dégagement, qui apparaît au début des traitements thermiques effectués, a été observée par de nombreux auteurs [12 - 32, 34] au cours d'études similaires sur des combustibles irradiés à basse température.

Ritzman et col. [12] attribuent cette anomalie à un processus d'immobilisation qui correspondrait à la précipitation du gaz. En effet, les atomes de gaz formés sous irradiation à basse température sont en solution sursaturée dans la matrice. Cette situation est instable et se transforme au début des recuits en un système à deux phases dans lequel du gaz en solution est à l'équilibre avec du gaz précipité dans des bulles. Ce changement rapide d'état se traduit par une migration forcée des atomes de gaz. Ainsi s'explique le dégagement rapide que l'on observe, de même que la différence entre les fractions de gaz dégagés au début des recuits à 1000°C sur les échantillons Ursula ($\pm 3\%$) dans lesquels le gaz est en solution, et à 1200 et 1270°C sur les échantillons Camille ($\pm 0,3\%$ et $0,6\%$) dans lesquels une partie du gaz est déjà précipité.

Les énergies d'activation déterminées par de nombreux auteurs [31,34] varient entre 42 et 85 Kcal/mole. Cette dispersion importante des résultats est attribuée aux facteurs suivants [35] :

- rapport C/U ,
- méthode expérimentale ,
- teneur en oxygène des échantillons ,
- défauts créés par l'irradiation dont le type et la densité diffèrent d'une expérience à l'autre .

La valeur la plus probable de E pour un carbure fritté stoechiométrique ou légèrement hyperstoechiométrique se situe entre 65 et 70 Kcal/mole .

Le passage au stade du gonflement exagéré se traduit dans les échantillons Camille par une augmentation rapide du coefficient de diffusion thermique apparent au-dessus de 1270°C . Le coefficient de diffusion vrai du gaz à une température donnée étant une constante, cette augmentation de D' ($= D/a^2$) ne peut être attribuée qu'à une diminution de "a" . En effet, le rayon de la "sphère équivalente", qui représente la distance rectiligne moyenne que doit parcourir un atome de gaz pour atteindre un canal et se dégager, diminue lors de la formation d'un réseau de bulles interconnectées .

CHAPITRE IV

INTERPRETATION DES RESULTATS POUR LA PREVISION DU COMPORTEMENT DES COMBUSTIBLES CARBURES EN PILE

Les paramètres d'irradiation prévus pour les carbures mixtes (U, Pu)C à joint sodium sont :

- T_c max. = 1000°C (ce qui correspond à une puissance linéaire d'environ 800 W/cm).
- $\nabla T = T_c - T_s \approx 250^\circ\text{C}$
- $\tau = 10$ à 12 at. % fissionné (objectif actuel de la filière neutrons rapides).
- $d \approx 92$ % de la densité théorique.

1 - Gonflement :

Dans le cas d'un bon fonctionnement du joint sodium nos résultats montrent que jusqu'à $\tau = 3$ at. % fissionné la vitesse de gonflement est de 1,45 %/at. fissionné, et est indépendante de la température. Cette valeur est en bon accord avec la vitesse de gonflement d'UC irradié en neutrons thermiques et mesurée par Montgomery et col. $\angle 36 /$:

1,35 %/at.% fissionné jusqu'à 5 at.% fissionné avec

$$T_c \approx 850^\circ\text{C}$$

Au-delà de ce taux de fission, faute de résultats

expérimentaux, il est très difficile de prévoir l'évolution du gonflement du carbure.

Lors de la mesure du volume de gaz dégagé des combustibles "Camille", on a retrouvé dans le sodium une quantité de Xénon et de Krypton allant jusqu'à 500 mm^3 ($\pm 10\%$ du volume total de gaz dégagés). Les bulles de gaz qui se maintiennent dans le joint sodium, ainsi que les défauts éventuels de fabrication (retassures...) créent un risque de mauvais refroidissement du carbure. La question se pose alors de savoir comment, dans ces conditions, peut évoluer le gonflement.

Nous avons porté (Figure 22) en fonction de la température centrale les taux de gonflement mesurés à partir d'irradiation expérimentales de carbures $\angle 37-38 /$. Ces résultats montrent que, pour $T_c > 1000^\circ\text{C}$, la vitesse de gonflement croît fortement avec la température suivant une loi exponentielle :

$$V_G = A \exp. \left(- \frac{B}{T} \right)$$

L'augmentation de la température centrale résultant d'un mauvais fonctionnement du joint sodium entraîne donc une accélération du gonflement. La porosité de gonflement est supposée diminuer la conductibilité thermique de la même façon que la porosité de frittage, et elle contribue à élever la température centrale d'où une nouvelle augmentation de la vitesse de gonflement.

Pour $G = 30\%$, la vitesse de gonflement étant fixée par la température d'irradiation, on peut envisager un ralentissement de l'augmentation de volume par une accommodation plus importante du

gonflement dans le réseau de pores interconnectés.

2 - Dégagements des gaz de fission :

A partir des résultats de l'expérience Ursula nous avons tracé :

- la courbe donnant le coefficient apparent D'

($D' = D'_T + D'_a$) sous forme d'un diagramme d'Arrhénius pour différentes valeurs de la vitesse de fission, V_f (Figure 23).

- la fraction F , de gaz dégagés par diffusion en fonction de la température centrale, avec $\nabla T = T_c - T_s = 250^\circ\text{C}$, et pour différentes valeurs de V_f et t (Figure 24).

Pour $T_c < 1000^\circ\text{C}$, la fraction de gaz dégagés est totalement contrôlée par la diffusion activée par l'irradiation. F est fonction de la racine carrée du taux de combustion pour une vitesse de fission donnée.

Pour différentes irradiations réalisées à la Section du Plutonium Irradié, F a été calculé et comparé aux résultats expérimentaux (Tableau VIII). On note un bon accord entre les deux séries de valeurs, excepté pour l'échantillon d'(U, Pu) N à joint hélium. Dans ce cas, il faut tenir compte des incertitudes d'une part sur la détermination de T_c et d'autre part sur la valeur de D' extrapolée à cette température.

L'examen du diagramme d'Arrhénius (Figure 23) montre que le coefficient de diffusion apparent D' varie rapidement avec la température, pour $T > 1000^\circ\text{C}$. Celle-ci doit donc être bien connue à tout instant de l'irradiation afin que la valeur de F calculée soit valable.

L'apparition du "breakaway swelling" qui se traduit par une diminution de "a" conduit à accroître D' donc F . Nous n'avons pas tenu compte de cet accroissement possible dans les calculs précédents.

En conclusion, on voit que le comportement du carbure sous l'angle gonflement et dégagement des gaz, données essentielles à connaître pour le calcul d'un élément combustible, évolue de façon très importante avec la température.

Au-dessous de 1000°C environ le gonflement G et le dégagement des gaz F , qui sont bien connus (hormis à fort taux de combustion), sont indépendants de la température. Par contre, lorsque $T_c > 1000 - 1200^\circ\text{C}$, G et F varient fortement avec T : on peut prévoir dans ce cas que T va croître avec le taux de combustion, ce qui entraînera une augmentation continue de la vitesse de gonflement et du taux de dégagement des gaz de fission. Le dessin de l'élément combustible doit alors s'en trouver fortement modifié (volume d'expansion, densité de remplissage).

CONCLUSION

Nos études ont permis de préciser les cinétiques de gonflement et de dégagement des gaz de fission des combustibles carbures.

Nous avons mesuré le gonflement d'échantillons d'(U, Pu)C irradiés à des températures centrales inférieures à 1000°C et pour des taux de combustion compris entre 1,7 et 3 at. % fissionné. Les résultats montrent que dans ces conditions le gonflement est athermique et varie linéairement avec le taux de combustion.

La vitesse de gonflement, déduite des mesures effectuées sur les échantillons d'UC irradiés à température modérée (expérience Ursula), s'explique par le maintien en solution sursaturée de la totalité des atomes de gaz de fission.

En effet, dans ces conditions on note un bon accord entre la vitesse de gonflement calculée dans le cas où le gaz reste en solution ($V = 1,18$ %/at. % fissionné) et celle mesurée ($V = 1,05$ %/at. % fissionné). Par contre, dans l'expérience Camille ($T_{C \text{ MAX}} = 970^\circ\text{C}$) la vitesse de gonflement est déjà sensiblement plus élevée ($V = 1,45$ %/at. % fissionné) par suite d'un début de précipitation des gaz.

La théorie de Barnes a été appliquée aux résultats du gonflement par recuits isochrones après irradiation. Nous avons ainsi défini les limites du stade de gonflement normal (0 à 8 %) et du stade de gonflement exagéré (8 à 30 %). Ce dernier stade correspond à l'interconnexion des bulles et conduit à une augmentation rapide de la fraction de gaz dégagés. D'autre part, la température correspondant au début de l'interconnexion diminue quand la quantité de gaz formé, donc le taux de combustion, augmente :

$$T_{\text{début interconnexion}} \text{ Ursula } \approx 1700^{\circ}\text{C}$$

$$T_{\text{début interconnexion}} \text{ Camille } \approx 1300^{\circ}\text{C}$$

Les mesures des volumes de gaz dégagés en pile ont mis en évidence l'importance du processus de diffusion activée par l'irradiation. Ainsi pour des températures d'irradiation inférieures à 1000°C ce processus contrôle seul la diffusion des gaz. La fraction de gaz dégagés est alors indépendante de la température et proportionnelle à la racine carrée du taux de combustion pour une vitesse de fission donnée :

$$F \propto \sqrt{V_f \cdot t} \quad \equiv \sqrt{\tau}$$

De 1000 à 1200°C environ le dégagement des gaz est contrôlé par les diffusions thermique et activée, et au-dessus de 1200°C uniquement par la diffusion thermique. La fraction de gaz dégagés croît alors rapidement avec la température.

Les mesures de la fraction de gaz dégagés en fonction du temps et en conditions isothermes ont mis en évidence une anomalie de dégagement que nous avons attribuée à un processus d'immobilisation, correspondant à la précipitation du gaz sous forme de bulles.

Nous avons noté un bon accord entre les valeurs expérimentales de la fraction de gaz dégagés au cours de différentes irradiations et les valeurs calculées en utilisant les coefficients de diffusion thermique apparents déterminés à partir des échantillons Ursula (UC).

Dans le cadre de l'étude du comportement des combustibles carbures à joint sodium irradiés en neutrons rapides il reste à déterminer :

- l'évolution du gonflement et du dégagement des gaz à fort taux de combustion,
- l'influence d'un défaut éventuel du joint sodium,

Nos résultats montrant clairement qu'au-dessous de 1000°C le dégagement des gaz et le gonflement sont athermiques, on peut prévoir assez facilement le comportement du combustible, alors qu'au-dessus de 1000°C l'apparition du gonflement exagéré peut avoir de graves conséquences sur la tenue des aiguilles.

ANNEXE I

CALCUL DE LA FRACTION DE GAZ DEGAGES EN FONCTION DU TEMPS ET DE LA TEMPERATURE

D'après Booth [39 /, Adda Philibert [40 /

1 - Fraction de gaz dégagé au cours de traitements thermiques isothermes après irradiation :

On se place dans le cas où le gaz est reparti de façon homogène dans le carbure. On considère que le solide est constitué de sphères juxtaposées de rayon a.

La concentration du gaz, c, en fonction de r (la distance au centre de la sphère) et du temps, t, est donnée par la solution de l'équation de Fick :

$$\frac{\delta u}{\delta t} = D \cdot \frac{\delta^2 u}{\delta r^2}$$

avec : $u = r \cdot c$

D = coefficient de diffusion

Les conditions aux limites sont $\left\{ \begin{array}{l} c = c_0 \text{ à } t = 0 \text{ pour } 0 \leq r \leq a \\ c = 0 \text{ à } r = a \text{ pour } t > 0 \end{array} \right.$

$$\text{soit : } c(r,t) = -\frac{2 \cdot a \cdot c_0}{r} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n} \cdot \sin\left(\frac{n \cdot \pi \cdot r}{a}\right) \exp\left(-\frac{n^2 \cdot \pi^2 \cdot D \cdot t}{a^2}\right)$$

La quantité de gaz dégagé au temps t par unité de surface est :

$$q_t = \int_0^t -D \left(\frac{\delta c}{\delta r} \right)_{r=a} \cdot dt = \frac{c_0 a}{3} \left[1 - \frac{6}{\pi^2} \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left(-\frac{n^2 \cdot \pi^2 \cdot D \cdot t}{a^2}\right) \right]$$

La quantité de gaz dégagé au temps t, à travers toute la surface de la sphère est :

$$Q_t = 4 \cdot \pi \cdot a^2 \cdot q_t$$

La fraction de gaz dégagé est donnée en divisant Q_t par la quantité totale de gaz contenue dans la sphère $\left(\frac{4}{3} \pi a^3 c_0 \right)$

On trouve en définitive :

$$F = 1 - \frac{6}{\pi^2} \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \cdot \exp\left(-\frac{n^2 \cdot \pi^2 \cdot D \cdot t}{a^2}\right)$$

Dans le cas où $\frac{\pi^2 \cdot D \cdot t}{a^2} \gg 1$ ($F \ll 0,1$) la série converge rapidement et en première approximation F est égal au premier terme de la série. Mais dans le cas de la diffusion des gaz rares dans les combustibles nucléaires : $\frac{\pi^2 \cdot D \cdot t}{a^2} \ll 1$; on montre alors que :

$$F = 6 \sqrt{\frac{Dt}{\pi a^2}} \quad \text{pour } 0,1 < F < 0,7 \quad (2)$$

$$\text{et } F = 6 \sqrt{\frac{Dt}{\pi a^2}} - 3 \cdot \frac{Dt}{a^2} \quad \text{pour } F > 0,7 \quad (2')$$

A partir des valeurs expérimentales de F on détermine directement la valeur du paramètre composé D/a^2 , que l'on écrit sous la forme $D' = D/a^2$. D' étant le coefficient apparent de diffusion.

Dans le cas où : $0,1 < F < 0,7$, D' est calculé à partir de la pente des droites $F = f(\sqrt{t})$:

$$D' = \frac{\pi}{36} \cdot \left(\frac{dF}{d\sqrt{t}} \right)^2$$

2 - Fraction de gaz dégagé à une température donnée en cours d'irradiation :

On calcule la fraction de gaz dégagé d'une sphère, de rayon a, à une température donnée, quand le gaz est formé à une vitesse V_p . Dans le calcul on ne tient compte que des isotopes stables où à grande durée de vie.

La concentration du gaz en fonction de t et r est donnée par la solution de l'équation :

$$\frac{\delta u}{\delta t} = D \frac{\delta^2 u}{\delta r^2} + V_p \cdot r \quad (u = r.c)$$

avec comme nouvelles conditions aux limites :

$$\begin{cases} c = 0 \text{ à } t = 0 \text{ pour } 0 \leq r \leq a \\ c = 0 \text{ à } r = 0 \text{ pour } t > 0 \end{cases}$$

soit :

$$\sin. c(r, t) = \frac{V_p}{6 D} (a^2 - r^2) + \frac{2 V_p a^3}{\pi^2 r D} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n^3} \sin. \left(\frac{n \pi r}{a} \right) \exp \left(- \frac{n^2 \cdot \pi^2 \cdot D \cdot t}{a^2} \right)$$

La fraction de gaz dégagé au temps t , est donnée par le rapport de la quantité de gaz dégagé à travers toute la surface, par la quantité totale de gaz formé dans l'intervalle de temps $(0, t)$.

En posant $D' = D/a^2$, on a :

$$F = 1 - \frac{6}{90 D't} + \frac{6}{\pi^4 D't} \cdot \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^4} \cdot \exp \left(- n^2 \cdot \pi^2 \cdot D't \right)$$

Pour $\pi^2 D't \ll 1$ on montre que :

$$F = 4 \sqrt{\frac{D't}{\pi}} \quad \text{pour } 0,1 \ll F \ll 0,7 \quad (3)$$

$$F = 4 \sqrt{\frac{D't}{\pi}} - 1,5 \cdot D't \quad \text{pour } F > 0,7 \quad (3')$$

3 - Calcul de la fraction de gaz dégagé d'un élément combustible sous irradiation :

3.1. Cas d'un petit élément ne présentant pas de variation axiale de la température :

Un calcul consiste à sommer la contribution au dégagement de toutes les sphères hypothétiques dans l'élément combustible en les considérant indépendantes les unes par rapport aux autres et chacune à une température uniforme fonction de leur position dans l'élément considéré.

Un calcul plus simple est fait à partir de l'approximation de la règle de Simpson en trois points :

$$F = \frac{1}{6} \left(F_{T_S} + 4 F_{T_M} + F_{T_C} \right) \quad (4)$$

F_{T_S} , F_{T_M} et F_{T_C} étant calculées à partir de (3 ou 3') avec :

- T_S = température de surface
- T_C = température centrale
- $T_M = \frac{T_S + T_C}{2}$

3.2. Cas de l'élément combustible avec gradient de température axiale :

Une autre sommation est alors nécessaire pour tenir compte de la variation de la température le long de la colonne fissile

A N N E X E II

DETERMINATION DU PROFIL DES TEMPERATURES DANS LA CAPSULE D'IRRADIATION URSULA

On se propose de calculer la relation entre la puissance linéaire dégagée et la température en différents points de la capsule.

Le calcul a été effectué pour quatre valeurs différentes de la puissance linéaire $W = 80, 120, 160, 240 \text{ W/cm}$.

Les données initiales sont les suivantes :

- température moyenne de l'eau lourde	$T_{e.l.} = 45^\circ\text{C}$
- coefficient d'échange paroi-eau lourde	$h_e = 0,91^\circ\text{C/W/cm}^2$
- conductibilité thermique de l'acier	$k_a = 0,17 \text{ W/cm }^\circ\text{C}$
- conductibilité thermique du Na K	$k_N = 0,27 \text{ W/cm }^\circ\text{C}$
- conductibilité thermique du carbure	$k_C = 0,16 \text{ W/cm }^\circ\text{C}$
- résistance thermique de contact acier-NaK	$R_1 = 0,1^\circ\text{C/W/cm}^2$

Les résistances thermiques de contact gaine inox-pastilles de combustibles ont été évaluées par itération en tenant compte du jeu à froid de la nature de l'atmosphère de remplissage (He) et des dilatations différentielles. Les valeurs des résistances thermiques en fonction de W sont consignées dans le tableau suivant :

W (W/cm)	80	120	160	240
R °C/W/cm ²	2,66	2,31	2,14	1,82

1 - Calcul des températures :

1.1. Conteneur externe (rayons $r_4, r_3 ; r_4 > r_3$).

- température froide = température moyenne de l'eau lourde plus la chute au contact inox-eau lourde :

$$T_4 = T_{e.l.} + \frac{W \cdot h_e}{2 \pi r_4}$$

- température chaude :

$$T_3 = T_4 + \frac{W}{2 \pi k_a} \cdot \ln \frac{r_4}{r_3}$$

1.2. Conteneur interne (rayons $r_2, r_3 ; r_2 > r_1$) :

- température froide : entrent en ligne de compte le gradient de température dans le Na K et les chutes au contact inox-Na K :

$$\Delta_3 = \frac{W \cdot R_1}{2 \pi r_3} \qquad \Delta_2 = \frac{W \cdot R_1}{2 \pi r_2}$$

$$T_2 = T_3 + \Delta_3 + \Delta_2 + \frac{W}{2 \pi k_N} \cdot \ln \frac{r_3}{r_2}$$

- température chaude :

$$T_1 = T_2 + \frac{W}{2 \pi k_a} \cdot \text{Ln} \frac{r_2}{r_1}$$

1.3. Gaines : (rayons $r_e, r_i ; r_e > r_i$) :

- température froide :

$$\Delta_1 = \frac{W R_1}{2 \pi r_1} \quad \Delta_e = \frac{W R_1}{2 \pi r_e}$$

$$T_e = T_1 + \Delta_1 + \Delta_e + \frac{W}{2 \pi k_N} \cdot \text{Ln} \frac{r_1}{r_2}$$

- température chaude :

$$T_1 = T_e + \frac{W}{2 \pi k_a} \cdot \text{Ln} \frac{r_e}{r_i}$$

1.4. Combustibles (r_i = rayon des pastilles) :

- température de surface :

$$T_S = T_1 + \frac{W \cdot R}{2 \pi \bar{r}} \quad \text{avec} \quad \bar{r} = \frac{r_i + r_e}{2}$$

- température à coeur :

$$T_C = T_S + \frac{W}{4 \pi k_C} \cdot F$$

F étant une fonction liée au creusement de flux.

2 - Détermination du taux de combustion par bilan thermique :

2.1. Puissance linéaire moyenne :

La température moyenne au niveau des thermocouples (T_{th}) est obtenue à partir des enregistrements effectués en continu au cours de l'irradiation. On en déduit la puissance linéaire moyenne (W_m) :

$$T_{th} = T_1 + \frac{W}{2 \pi k_a} \cdot \ln \frac{r_1}{r_{th}} = A \cdot W_m + T_{e.l.}$$

- r_{th} = position radiale des thermocouples

- A = constante

2.2. Taux de combustion :

$$\tau = \frac{W_m}{\pi r_1^2 d}$$

d = densité du combustible (g/cm^3)

τ = taux de combustion (MW/t)

BIBLIOGRAPHIE

- ∠1 / P. MAGNIER - A. ACCARY
Carbides in Nuclear Energy
Harwell (1963), Vol. 1 page 31.
- ∠2 / R.N.R. MULFORD - F.H. ELLINGER -
G.S. HENDRIX - E.D. ALBRECHT
Conf. Inter. Metall. Plutonium
Grenoble (1960) page 32.
- ∠3 / S. ROSEN
Report ANL-6435 (1963)
- ∠4 / B.G. CHILDS - J.C. RUCKMAN - K. BUXTON
Carbides in Nuclear Energy
Macmillan (1964) page 849
- ∠5 / L.B. GRIFFITHS
JMN, 4, (1961), 336
- ∠6 / J. BLOCH - J.P. MUSTELIER
JMN, 17, (1965), 350-355
- ∠7 / L.B. GRIFFITHS
Phil. Mag, 7, (1962), 827
- ∠8 / N. LORENZELLI - J.P. MARCON
Présenté au PANEL de VIENNE,
Behaviour and chemical states of irradiated
ceramic fuels, 7-11 août 1972

- ∠9 / B.F. RIDER
GEAP 5356 (1967)
- ∠10 / K.A. VARTERESSIAN - L. BURRIS
ANL 7678, (1970)
- ∠11 / G.W. JOHNSON - R. SHUTTLEWORTH
Phil. Mag. , 4, (1959), 957
- ∠12 / R.L. RITZMAN - R.B. PRICE - D.L. MORRISON
ANS 12 , (1969), 79
- ∠13 / B.L. EYRE - R. BULLOUGHES
JMN, 26 , (1968), 249-266
- ∠14 / A.D. WHAPHAM - B.E. SHELDON
Nucl. Appl. 2, (1966), 123
- ∠15 / R.S. BARNES
J.M.N. 11, (1964), 135-148
- ∠16 / J.A. TURNBULL - R.M. CORNELL
JMN 41 , (1971), 87-90
- ∠17 / A.D. WHAPHAM
Nucl. Appl. 2 , (1966), 123-130
- ∠18 / HJ. MATZKE - C. RONCHI
European Institute for Transuranium Elements
Karlsruhe, Rapport n° 13 (1972)

- 219 / D.I. SINIZER - B.A. WEBB - S. BERGER
NAA - SR - 7248 (1962) page 30
- 220 / J.A. BRINKMAN
Nucl. Mét. 6, (1959), 1-11
- 221 / M.L. BLEIBERG
JMN, 1, (1959), 182
- 222 / A.H. BOOTH - G.T. RYMER
AECL Report CRDC 720, (1958)
- 223 / R. LORENZELLI - P. PETIT
Rapport CEA - R - 3603 (1968)
- 224 / H. MIKAILOFF - J. LECLERE - B. KRYGER -
J. BLOCH - M. CONTE
Note CEA - N - 1186
EUR-43-47-F, (1969)
- 225 / H. MIKAILOFF - J. LECLERE - B. KRYGER -
J. BLOCH - M. CONTE
Rapport CEA - R - 3223
- 226 / J. ROUSSEAU
Communication personnelle
- 227 / A.D. WHAPHAM
AERE R-6595, (1970)

- ∠28 / J.W. HARRISON
JMN 30 , (1969), 319-323
- ∠29 / J.B. RICH - G.P. WALTERS - R.S. BARNES
JMN 4, (1961), 287
- ∠30 / A.T. CHURCHMAN - R.S. BARNES - A.H. COTTRELL
J. Nucl. En. 7, (1958), 98
- ∠31 / J.B. MELEHAN - J.E. GATES
BMI 1701 (1964)
- ∠32 / A. AUSKERN - Y. OSAWA
JMN 6, (1962), 334 - 335
- ∠33 / L.R. ZUMWALT - P.E. GETHARD - E.E. ANDERSON
ANS 6, (1963), 132
- ∠34 / H. SHAKED - D.R. OLANDER - T.H. PIGFORD -
Nucl. Sci. Eng. 29 , (1967), 122-130
- ∠35 / H. FURUYA - J. KOMATSU - T. MUTO -
A. DOI - K. INOUE -
Tokai Works
PNC - N - 831 - 70 - 02.
- ∠36 / M. MONTGOMERY - G. GRANDO - A. STRASSER
(GUEF-UNC) ANS 14 Vol. n° 2
Miami Beach - October 1971
- ∠37 / H. MIKAILOFF - CEA - DMECN - DECPu
Note technique SPuI n° 255 - Avril 1973

- ∠38 / R.D. BAKER - J.L. GREEN
LA - 4749 - MS (avril - Juin 1971)
- ∠39 / A.H. BOOTH
AECL Report CRDC 721, (1958)
- ∠40 / Y. ADDA - J. PHILIBERT
La diffusion dans les solides
Tome I (1966)
Bibliothèque des sciences et techniques nucléaires.
- ∠41 / H. ZIMMERMANN
Centre d'Etudes Nucléaires de Karlsruhe
Rapport PSB n° 345
- ∠42 / G.W. GREENWOOD - A. BOLTAX
JMN 5 , (1962), 234-240
- ∠43 / A. HÖH , HJ. MATZKE
JMN 48 , (1973) , 157-164

Manuscrit reçu le 16 février 1976

rayon de la bulle r (cm)		10^{-7}	10^{-6}	10^{-5}	10^{-4}
nombre de lacunes N		$1,4 \times 10^2$	$1,4 \times 10^5$	$1,4 \times 10^8$	$1,4 \times 10^{11}$
nombre d'atomes de Xénon m		45	$2,5 \times 10^4$	$4,6 \times 10^6$	5×10^8
nombre de lacunes par atome de Xénon N/m		3	6	30	300
pour $C = 10^{-3}$ at.gaz/at	densité de bulle (b./cm ³)	7×10^{17}	$1,5 \times 10^{15}$	7×10^{12}	5×10^{10}
	gonflement ($\Delta V/V - \%$)	0,3	0,55	3	30

**TABLEAU I : INFLUENCE DE LA TAILLE DES
BULLES SUR LE NOMBRE DE
LACUNES PAR ATOME DE XENON.**

Puissance linéaire		80 W/cm	120W/cm	160W/cm	240W/cm
Veine liquide D ₂ O	température moyenne	45°C	45°C	45°C	45°C
conteneur externe Ø 20 x 22	température froide	57°C	63°C	69°C	79°C
	température chaude	64°C	74°C	83°C	100°C
conteneur interne Ø 14 x 16	température froide	77°C	93°C	108°C	137°C
	température chaude	87°C	107°C	128°C	165°C
gaine Ø 4,13 x 4,83	température froide	144°C	192°C	242°C	327°C
	température chaude	157°C	212°C	267°C	362°C
combustible	température de surface	324°C	430°C	537°C	705°C
	température à coeur	364°C	490°C	612°C	817°C

**TABLEAU II : REPARTITION RADIALE DE LA TEMPERATURE
DANS LA CAPSULE URSULA**

crayon h°	niveau	Taux de combustion (MWj/t)		Température moyenne au thermocouple (°C)	Température (°C) centrale		Puissance linéaire moyenne (W/cm)		
		bilan thermique	moniteur Cobalt		1er cycle	2e cycle	1er cycle	2e cycle	
U 12	TC1	5 200	5 080	143	120	582	488	148	113
	TC2	5 300	5 080	146	121	595	493	153	115
	TC3	5 200	5 080	139	124	565	504	142	120
U 11	TC4	4 500	4 800	129	110	525	447	127	98
	TC5	4 100	4 650	122	100	496	406	117	83
	TC6	3 400	4 300	114	90	465	375	104	86

T_c max. enregistrée au début du cycle sur TC 1 = 645°C

TABLEAU III : URSULA : CARACTERISTIQUES
DE L'IRRADIATION.

z (cm) côtes		bas	5	10	15	20	25	30	haut
aiguille CA 23	température au milieu de la gaine (°C)	450	480	510	540	565	580	590	595
	température de surf. du combustible (°C)	510	550	590	620	645	650	645	635
	température à cœur du combustible (°C)	710	790	855	895	910	890	835	785
	puissance linéaire (W/cm)	525	630	705	725	710	630	505	390
	taux de combustion (at. % fissionné)	2,00	2,40	2,68	2,75	2,70	2,39	1,92	1,48
	température au milieu de la gaine (°C)	455	495	525	570	600	625	645	650
	température de surf. du combustible (°C)	520	570	610	655	690	705	705	695
aiguille CA 23	température à cœur du combustible (°C)	730	825	905	955	975	960	910	855
	puissance linéaire (W/cm)	565	675	755	780	760	675	540	415
	taux de combustion (at. % fissionné)	2,16	2,59	2,88	2,98	2,90	2,57	2,07	1,59

TABLEAU IV : CARACTERISTIQUES D'IRRADIATION DE
DEUX AIGUILLES CAMILLE.

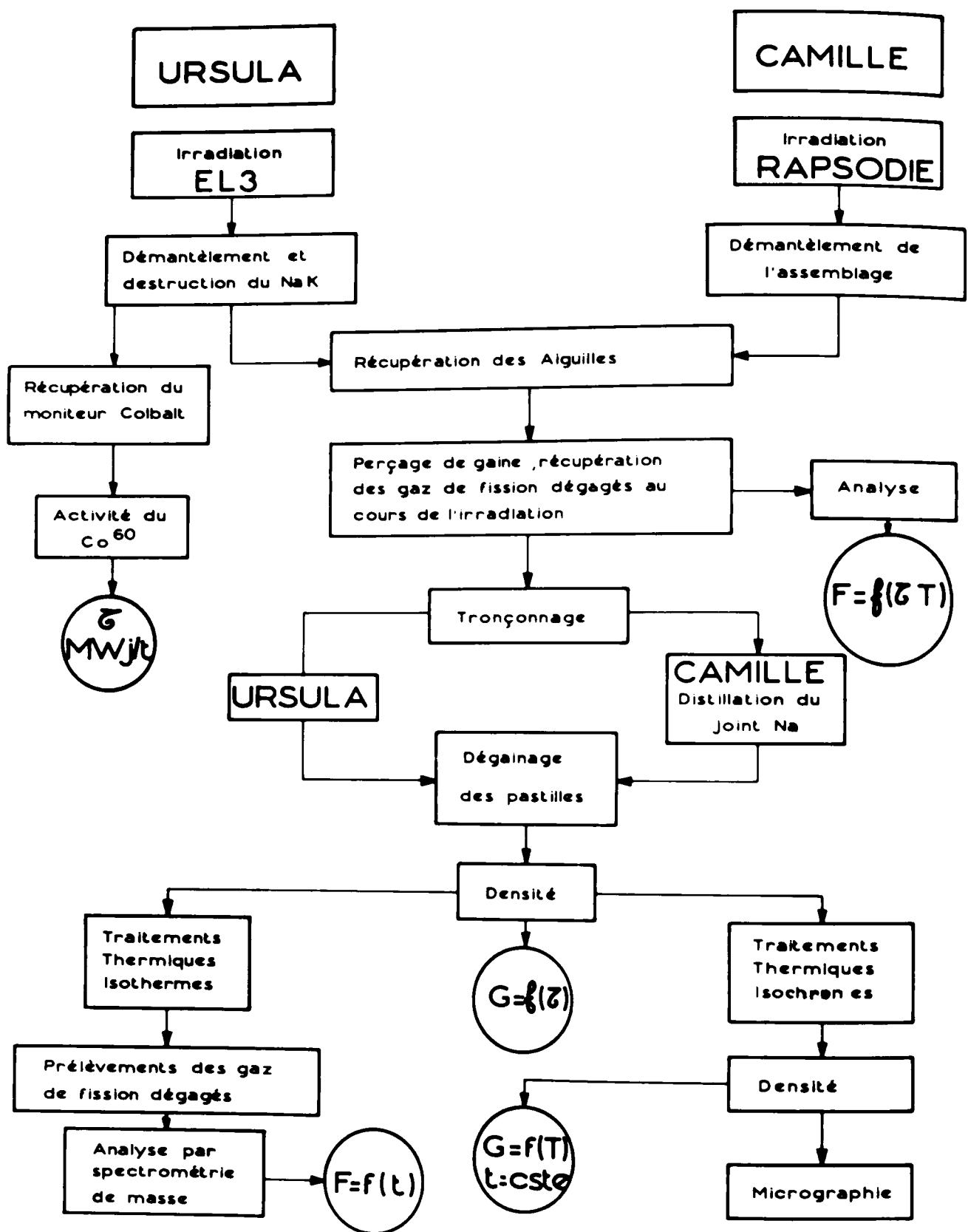


TABLEAU V ORGANIGRAMME DES EXAMENS

Lame n°	Taux de combustion at. % fissionné	Température centrale (°C)	Fraction de gaz retenus (%)
1	2,0	740	98,5
2	2,0	880	98
3	2,9	880	96,5

**TABLEAU VI : INFLUENCE DU TAUX DE COMBUSTION
ET DE LA TEMPERATURE D'IRRADIATION
SUR LA FRACTION DE GAZ RETENUS.
COMBUSTIBLE CAMILLE.**

	URSULA - neutrons thermiques							CAMILLE - neutrons rapides			
	aigu. U 12	1000°C 1/2h.	1200°C 1/2h.	1200°C 1h. 1/2	1400°C 1/2h.	1400°C 1h.	1400°C 3h.	aigu. CA 22	1200°C 3h.	1400°C 1h.	1400°C 1h. 50'
Kr/Xe	14,6	14,01	13,85	14,04	14,7	14,57	17,03	16,0	15,98		
Xe ¹³¹	9,7	10,37	10,39	10,43	10,7	10,47	14,69	15,3	15,34		
Xe ¹³²	16,7	16,27	16,31	16,24	16,0	16,30	21,66	22,0	21,75		
Xe ¹³⁴	28,8	28,71	28,59	28,62	28,5	28,79	34,57	34,10	34,01		
Xe ¹³⁶	44,7	44,65	44,67	44,71	44,8	44,39	29,08	28,6	28,88		
Kr ⁸³	13,6	14,9	13,34	13,70	14,8	13,38	15,87		15,86	15,95	
Kr ⁸⁴	27,8	28,4	27,72	27,9	26,4	27,62	27,69		27,68	27,83	
Kr ⁸⁵	8,0	8,5	7,27	6,7	7,6	7,12	6,63		6,47	6,46	
Kr ⁸⁶	50,6	48,1	51,67	51,70	51,2	51,88	49,81		49,99	49,76	

TABLEAU VII : DEGAGEMENT DES GAZ DE FISSION
RAPPORTS ISOTOPIQUES.

Expérience	Combustible	joint	temps d'irradiation (sec.)	vitesse de fission (f.cm ⁻³ .sec ⁻¹)	T _S (°C) moyen	T _C (°C) moyen	F calculé (diffusion + recul)	F mesuré
URSULA	UC	He	5,6 x 10 ⁶	3,05 x 10 ¹³	510	580	0,23 F 1,04	0,26
CAMILLE	n°22 (U, Pu) C	Na	1,26 x 10 ⁷	6,2 x 10 ¹³	580	830	0,37 F 2,6	1,85
		Na	1,26 x 10 ⁷	6,6 x 10 ¹³	630	880	0,4 F 2,8	3,2
MFBS III	(U, Pu) C n° 1	He	4,7 x 10 ⁴		1100	1850	2,65	3,5
		He	4,7 x 10 ⁴		1270	2330	19,2	2,5
		Na	4,7 x 10 ⁴		600	1970	2,65	1,1
MFBS I	(U, Pu) C	Na	8,64 x 10 ⁵	6,4 x 10 ¹³		1360	0,19 F 0,73	0,2
		Na	8,64 x 10 ⁵	4,0 x 10 ¹³		1090	0,20 F 0,65	0,1

TABLEAU VIII : COMPARAISONS ENTRE LES VALEURS CALCULEES ET MESUREES DE LA FRACTION DE GAZ DEGAGES.

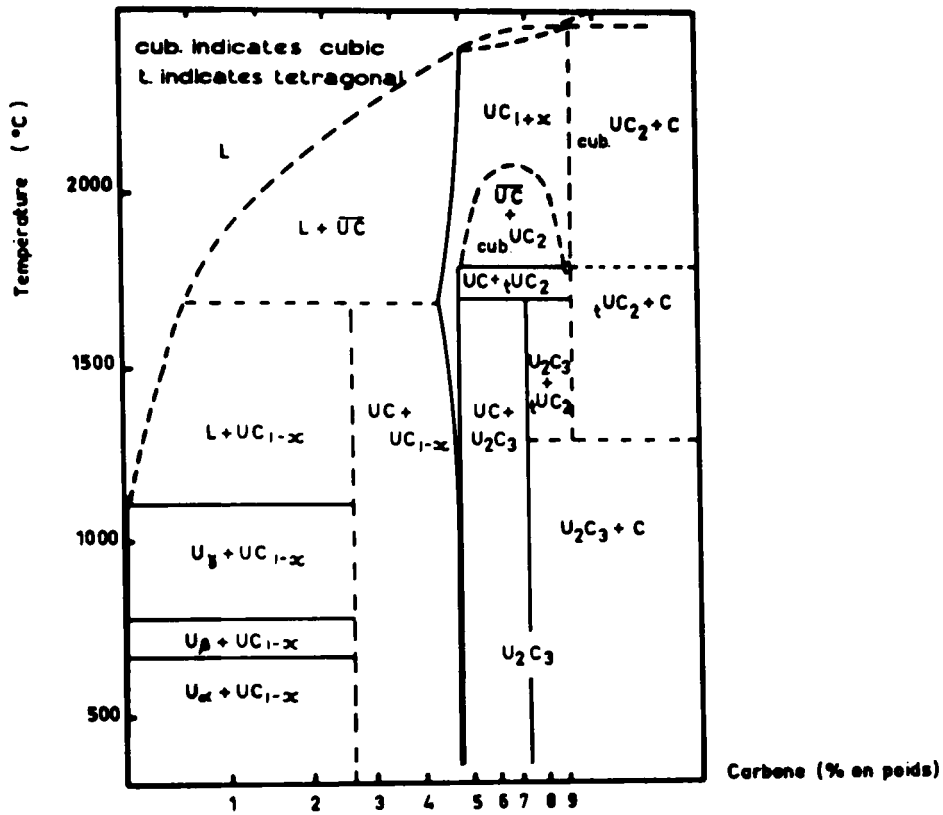


Figure 1. DIAGRAMME D'UC [1]

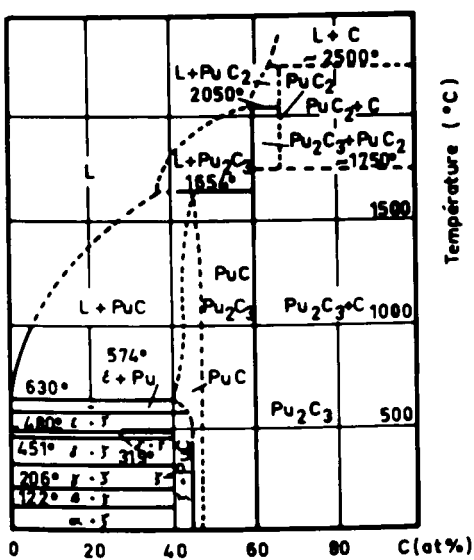


Figure 2. DIAGRAMME PLUTONIUM CARBONE [2]

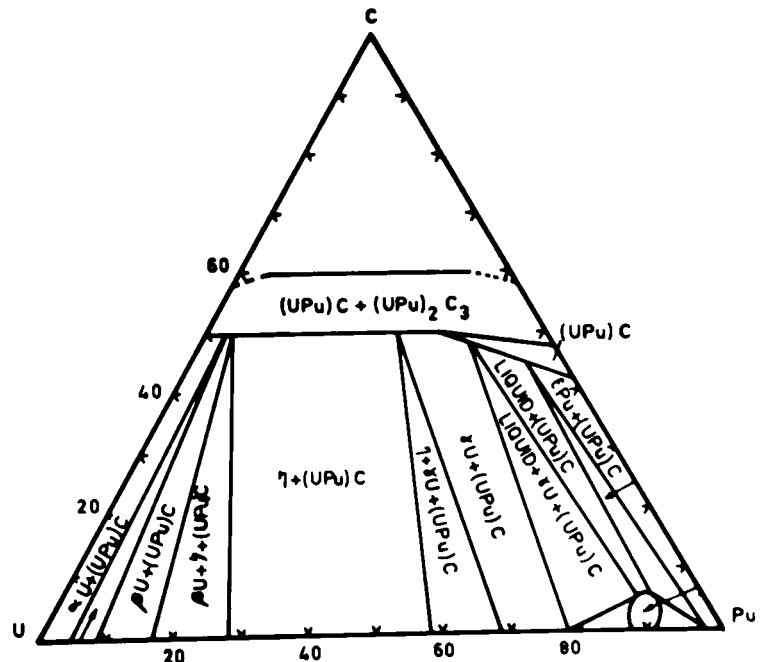
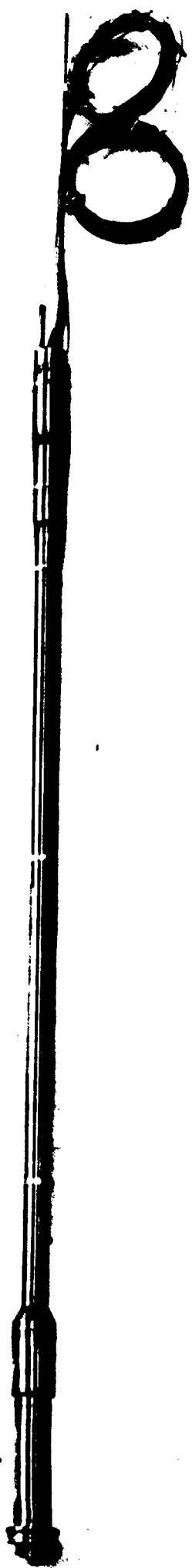


Figure 3. ISOTHERME A 635°C DU SYSTEME U-Pu-C, DE 0 A 60 at.% [3]



500 mm

FIG: 4 - DISPOSITIF D'IRRADIATION URSULA

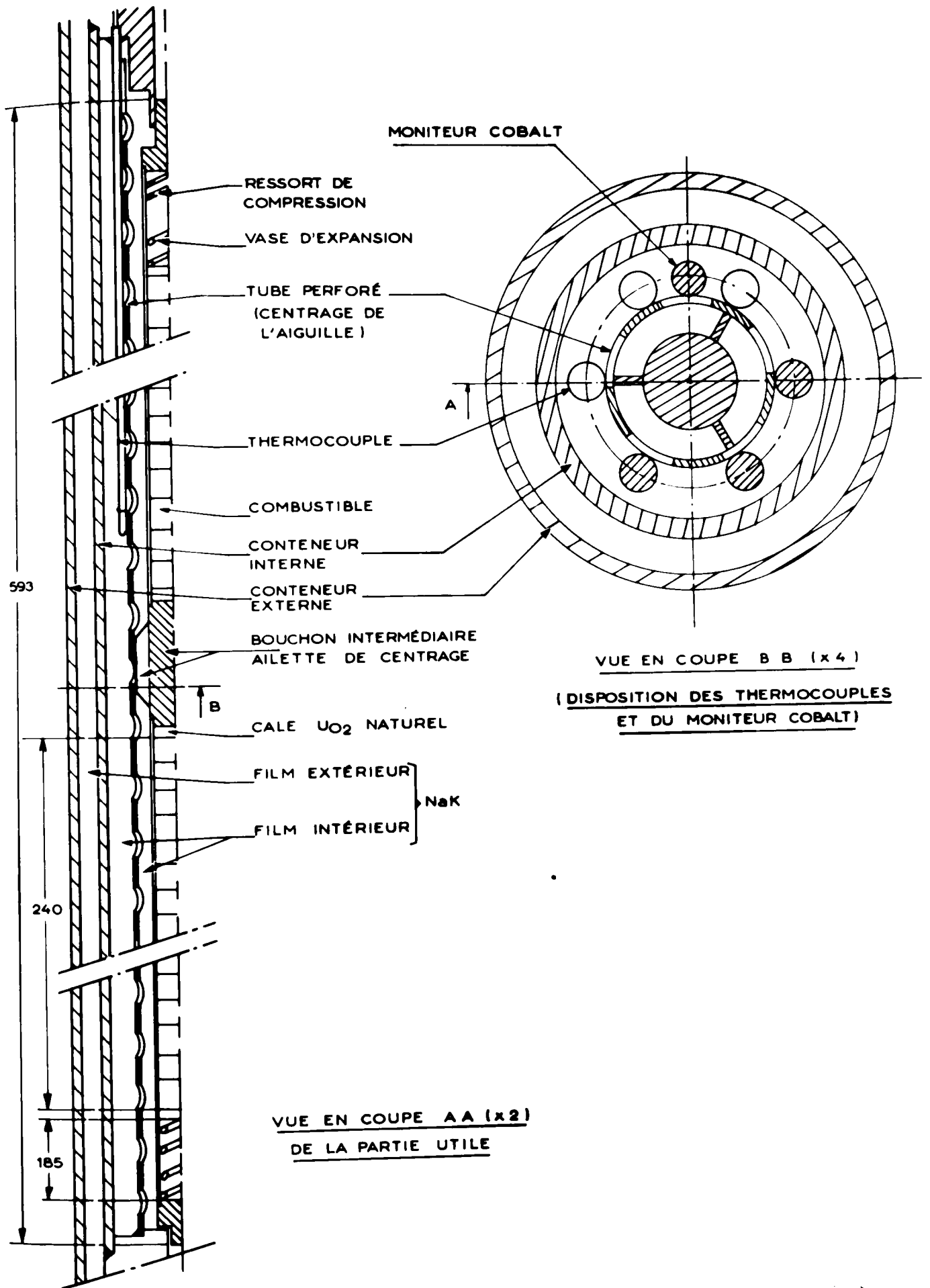
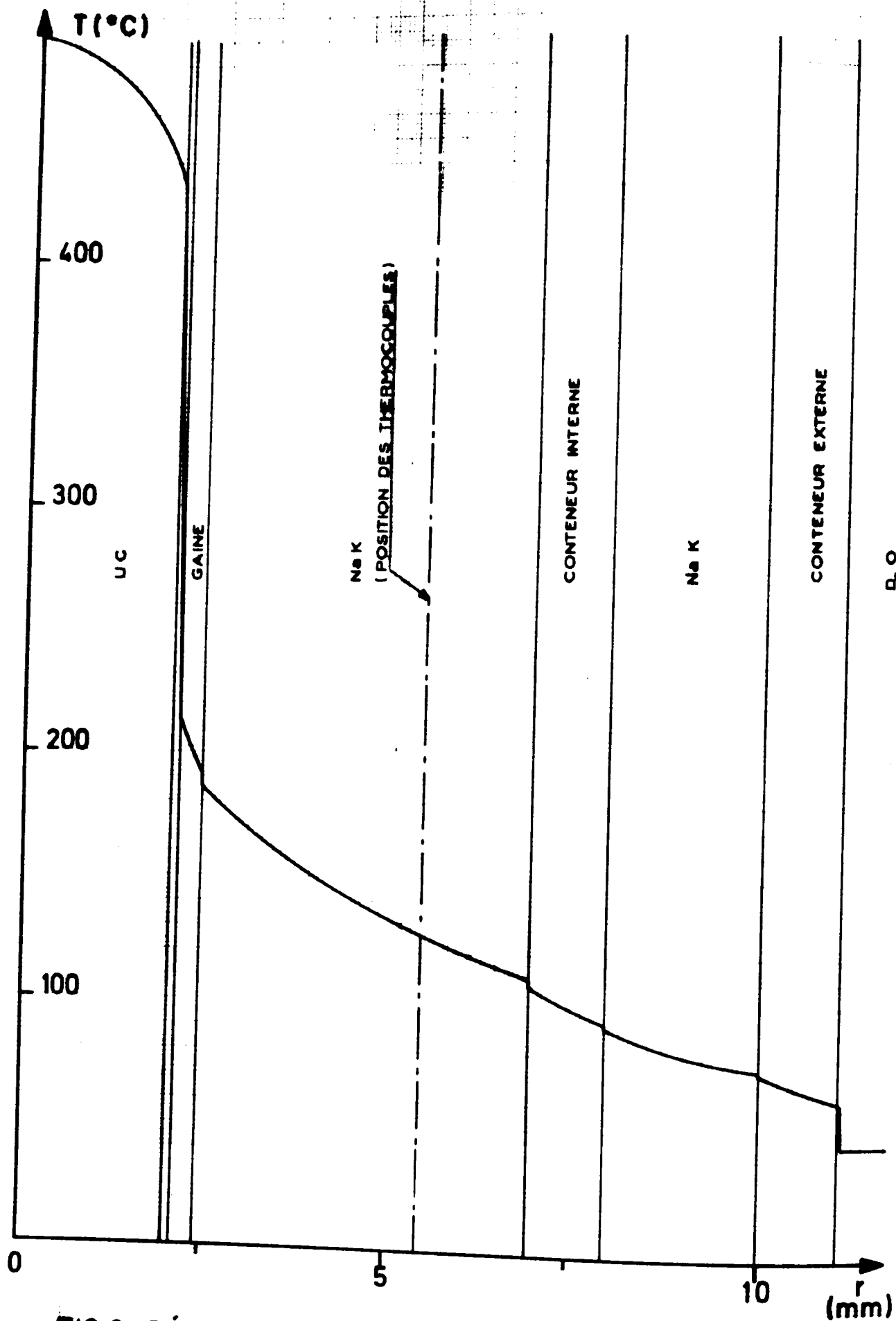


FIG: 5 DISPOSITIF D'IRRADIATION URSULA



**FIG 6 - RÉPARTITION RADIALE DES TEMPÉRATURES
DANS URSULA ($W = 120 \text{ W/cm}$)**

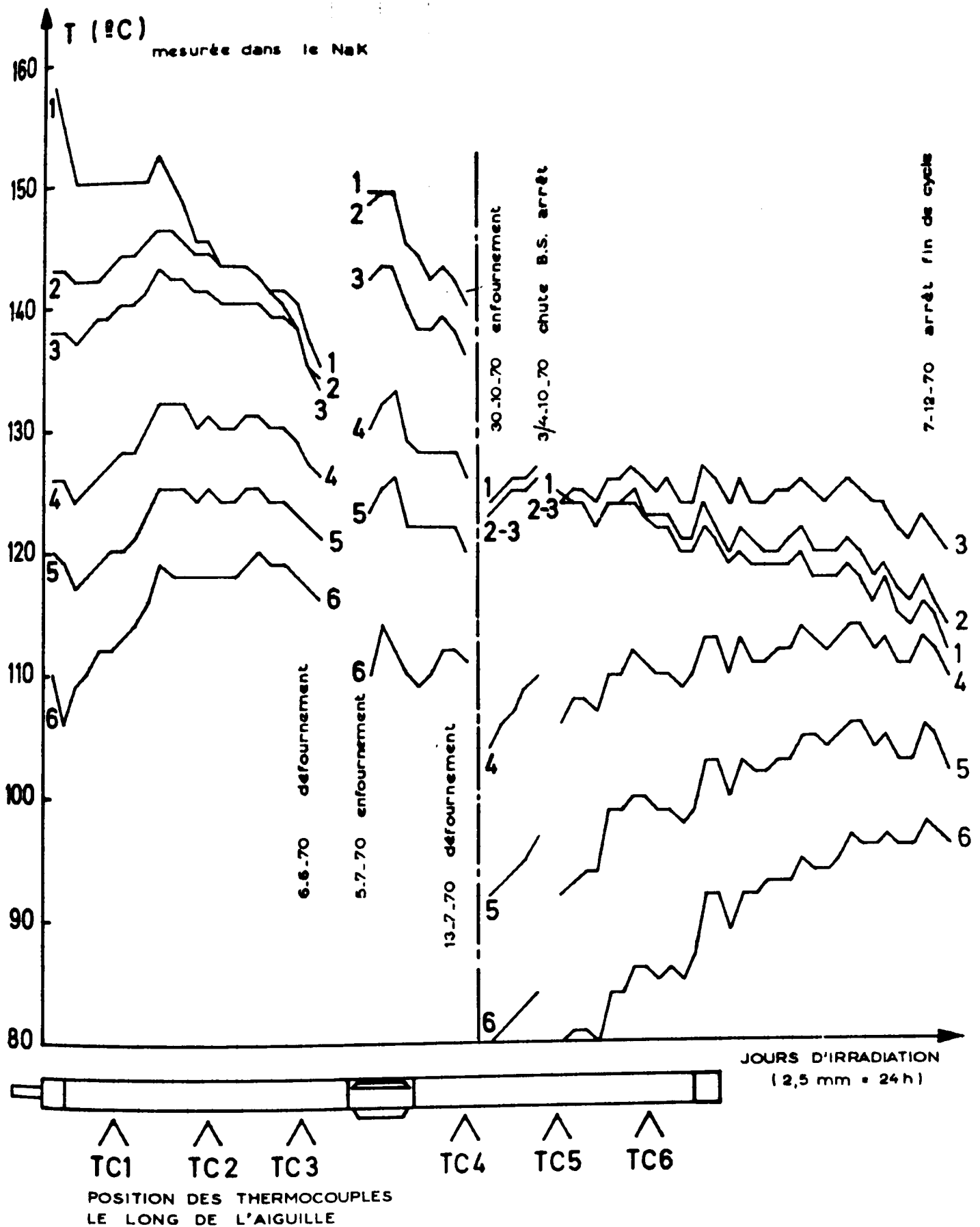
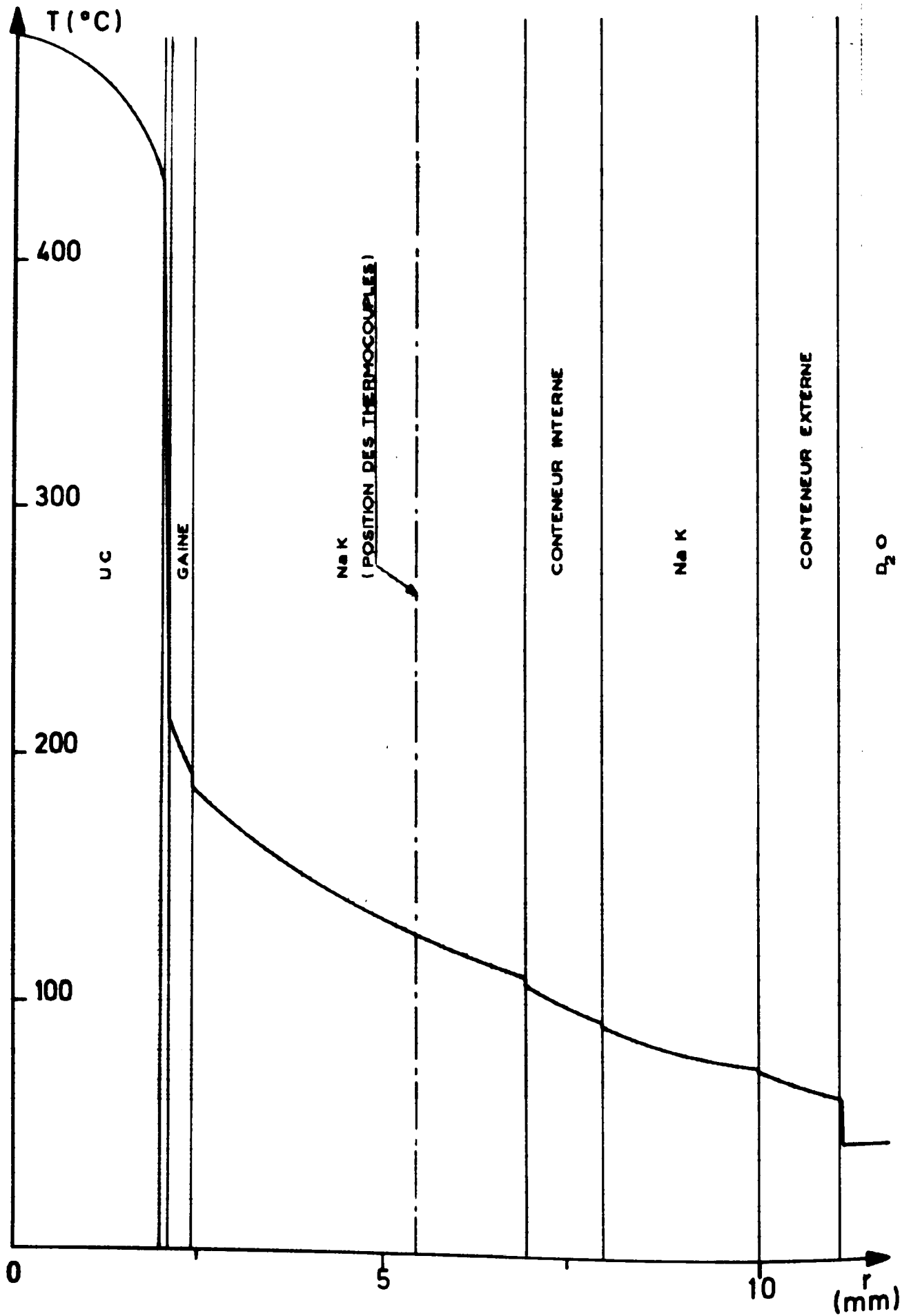


FIG: 7 ENREGISTREMENT DE LA TEMPÉRATURE
 EN COURS D'IRRADIATION



**FIG 6 - RÉPARTITION RADIALE DES TEMPÉRATURES
DANS URSULA ($W = 120 \text{ W/cm}$)**

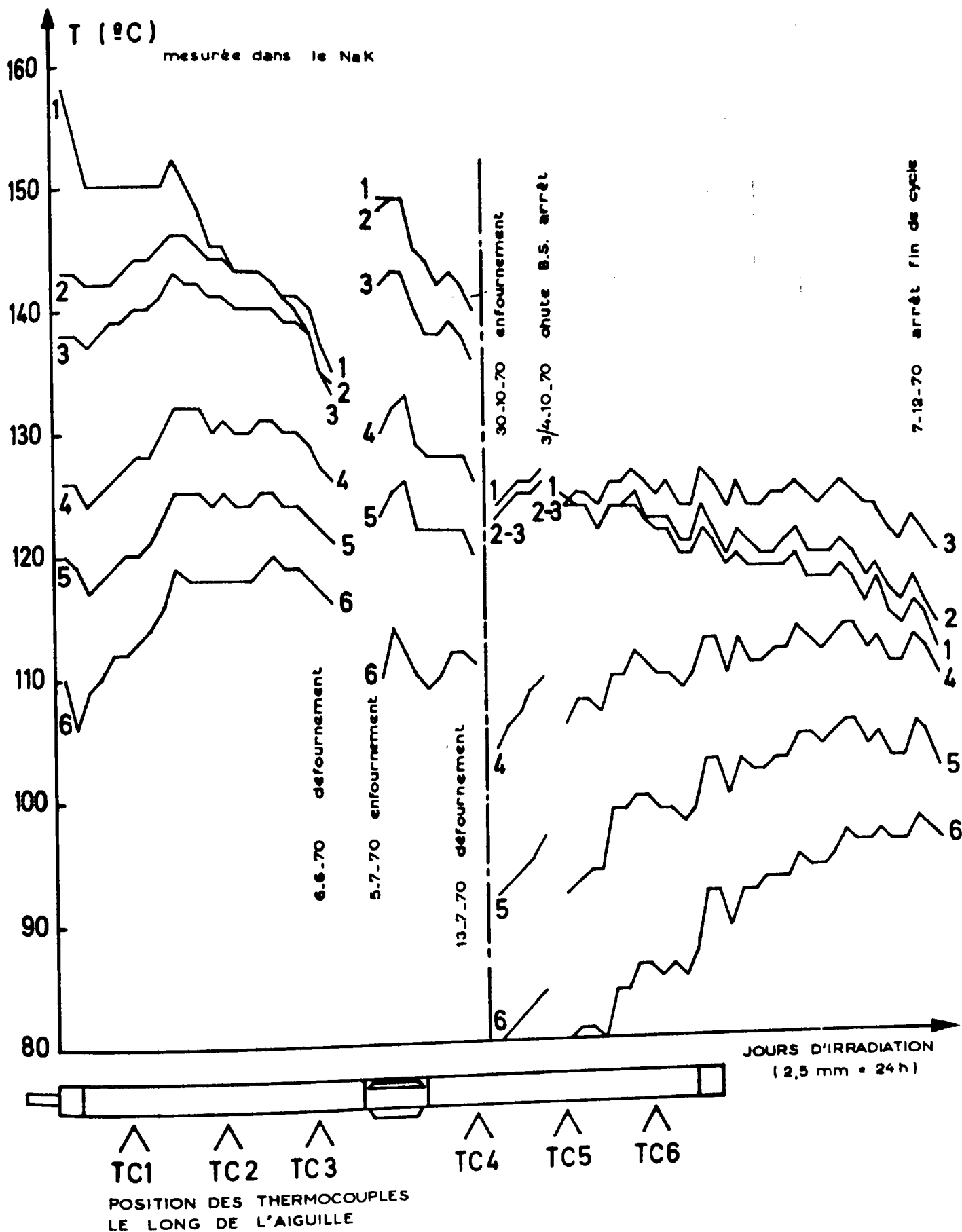


FIG:7 ENREGISTREMENT DE LA TEMPÉRATURE EN COURS D'IRRADIATION

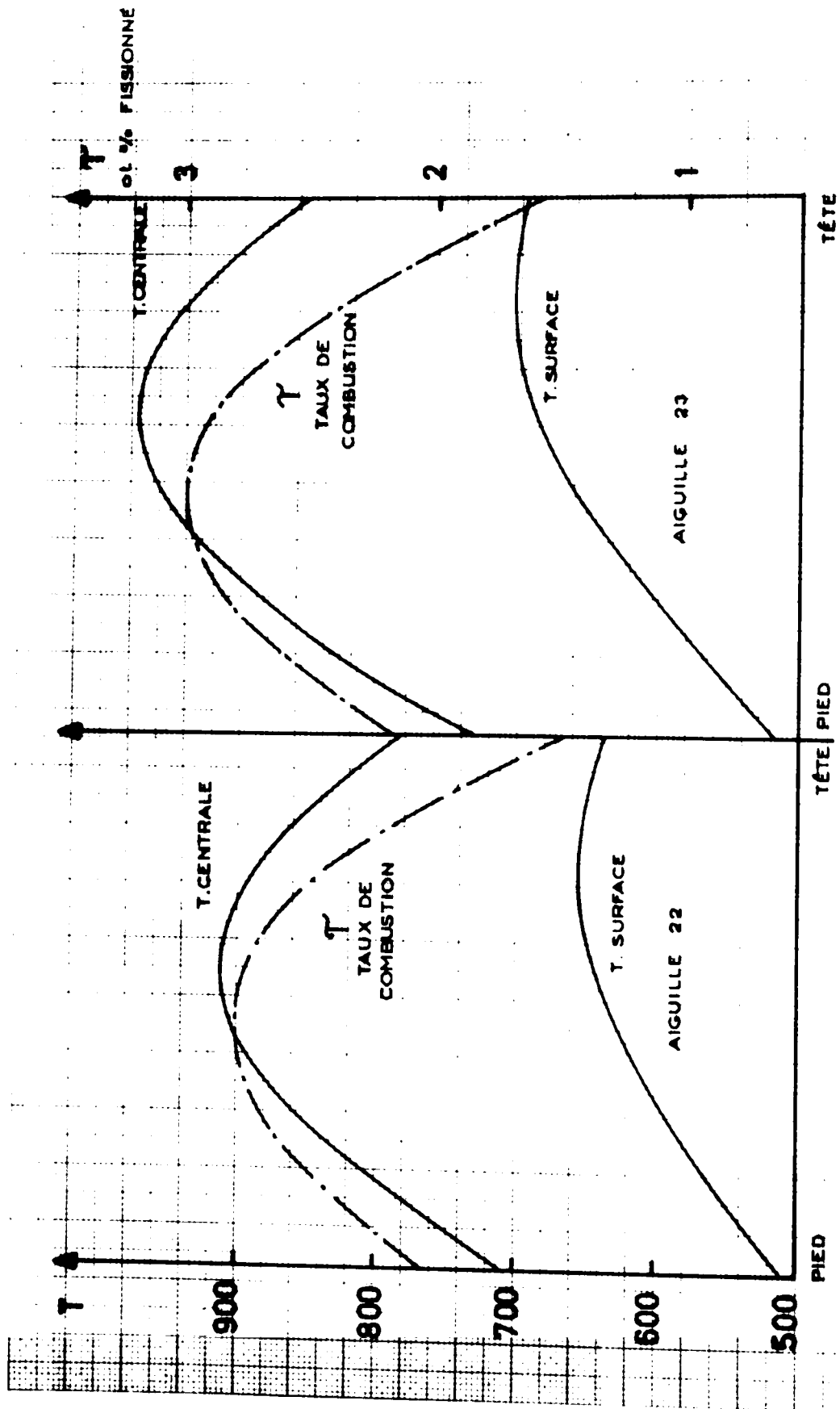


FIG: 8 TEMPÉRATURES ET TAUX DE COMBUSTION LE LONG DES COLONNES FISSILES DES AIGUILLES CAMILLE N° 22 ET 23

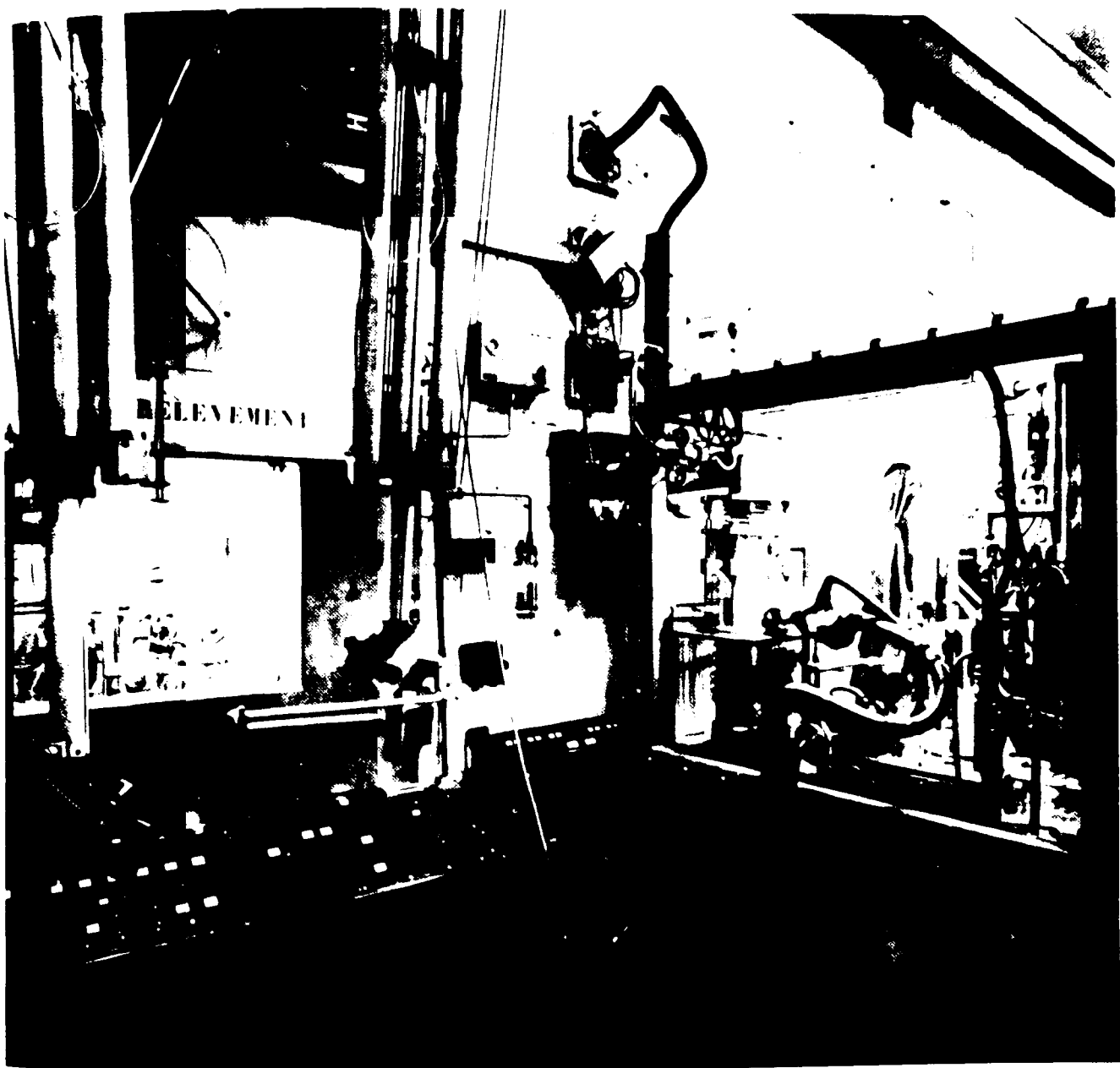


FIGURE : 9

VUE D'ENSEMBLE DU FOUR A HAUTE FREQUENCE
ET DE LA RAMPE D'EXTRACTION DE GAZ

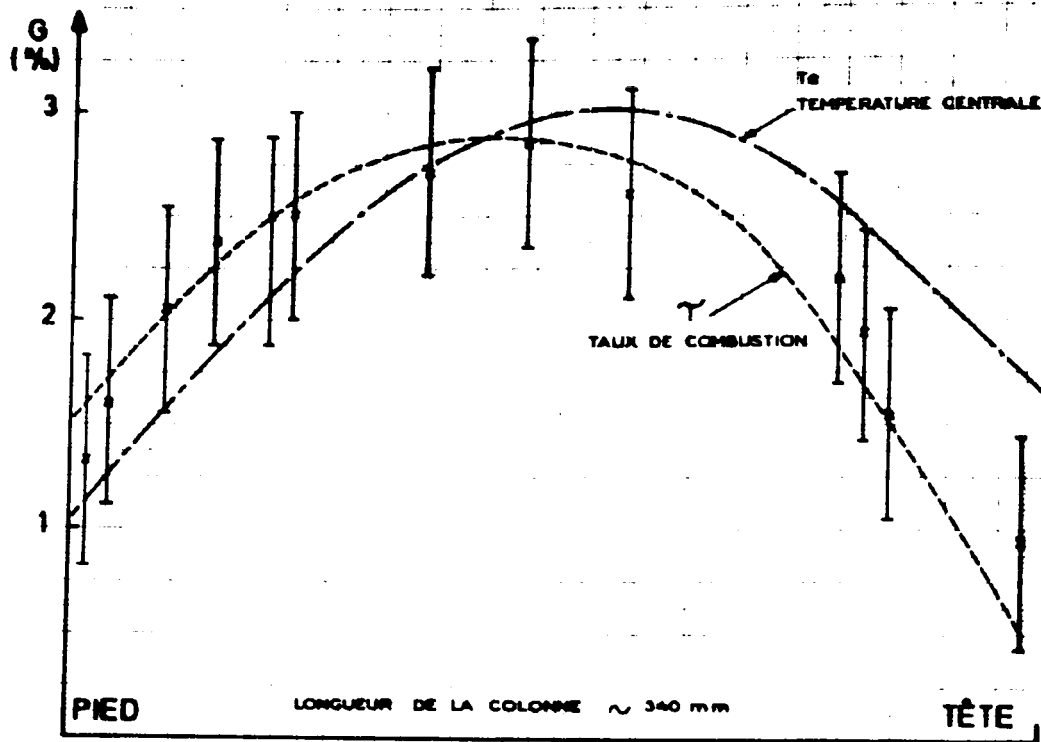


FIG 10 - PROFIL DE GONFLEMENT DU CARBURE LE LONG DE LA COLONNE DE L'AIGUILLE CAMILLE (N°22)

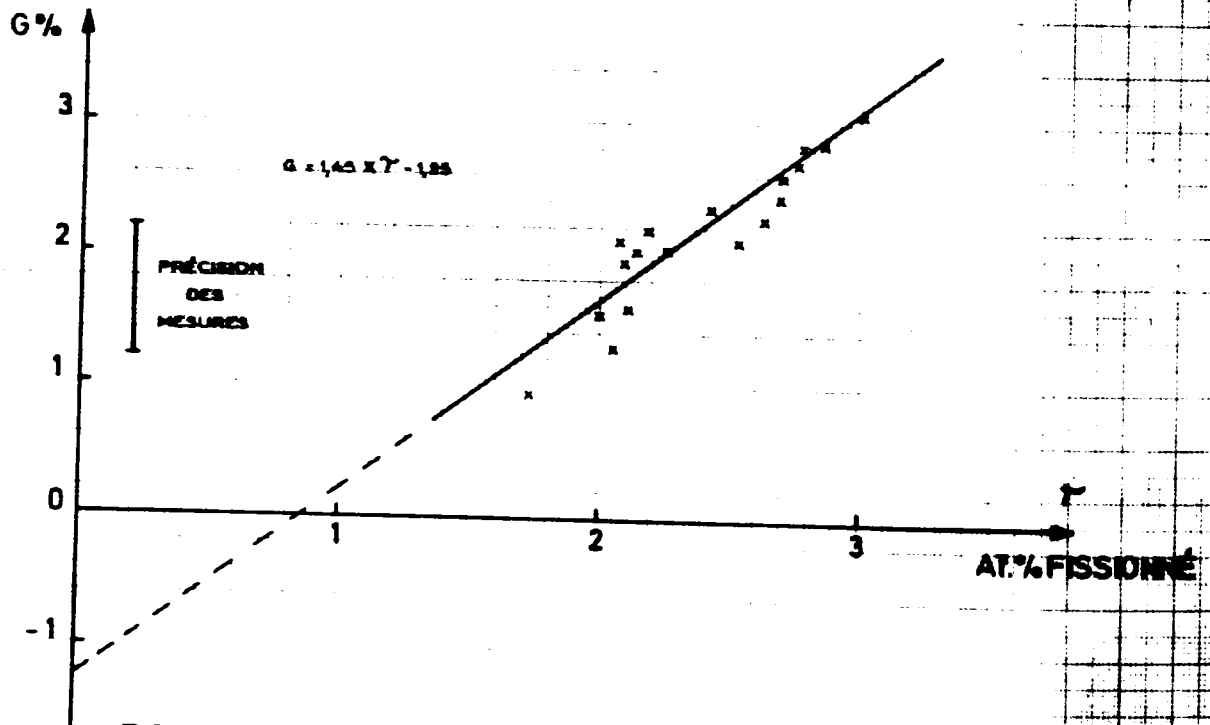


FIG 11 - IRRADIATION CAMILLE AIGUILLE 22 ET 23
GONFLEMENT DU CARBURE EN FONCTION
DU TAUX DE COMBUSTION

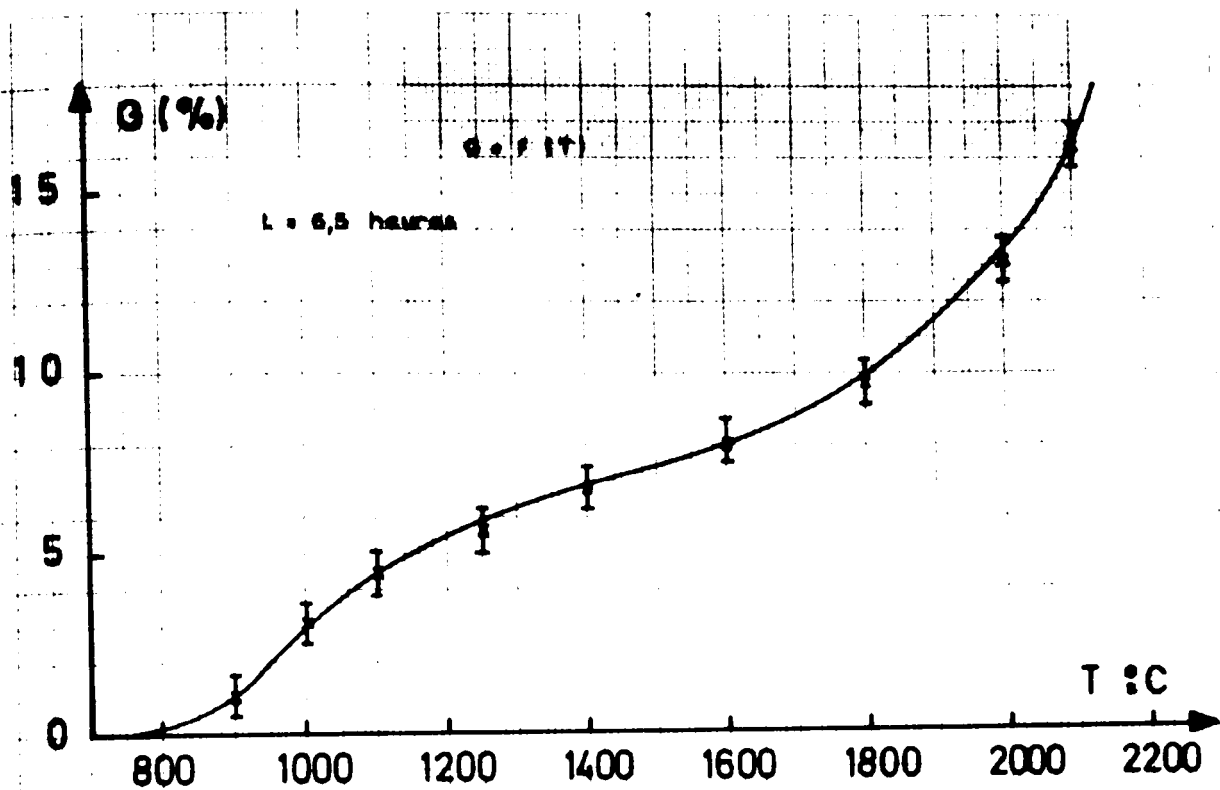


FIG:12 GONFLEMENT DU CARBURE "URSULA" PAR RECUITS ISOCHRONES APRÈS IRRADIATION

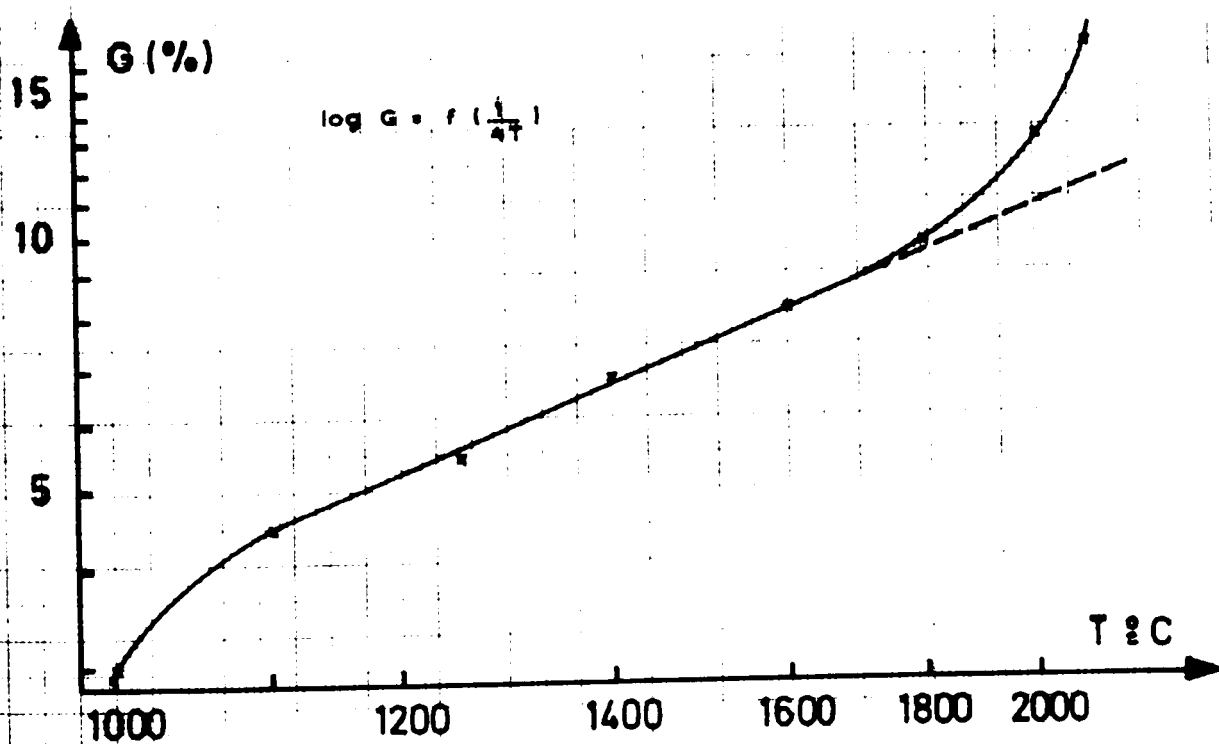
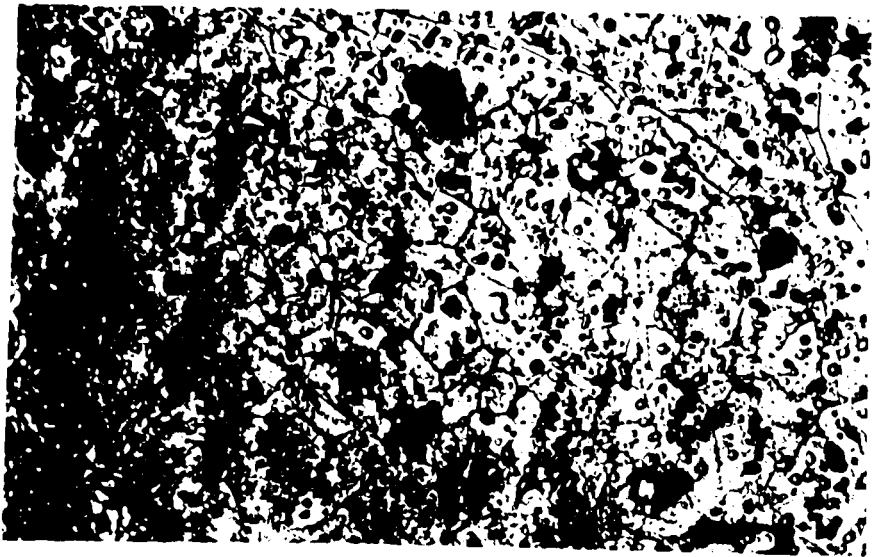


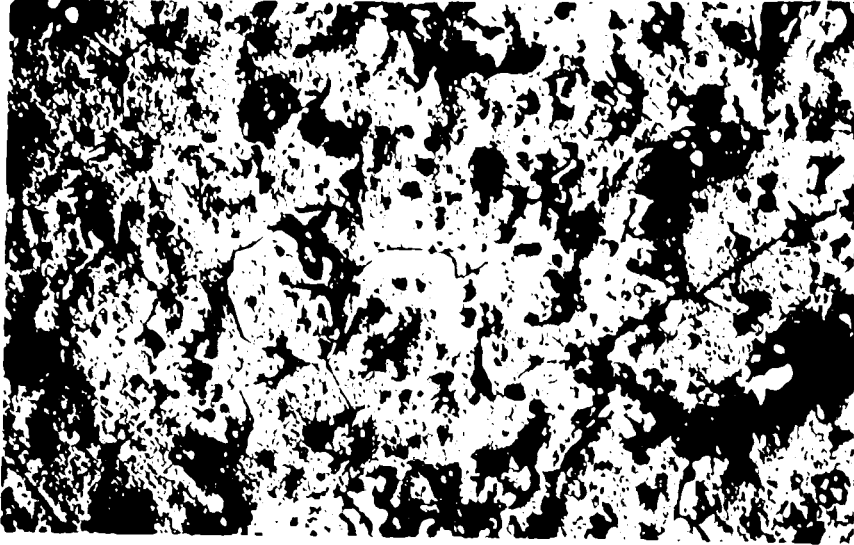
FIG: 13 GONFLEMENT DU CARBURE, EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE DE RECUIT, TRAITÉ SUIVANT LE MODÈLE DE BARNES [15]





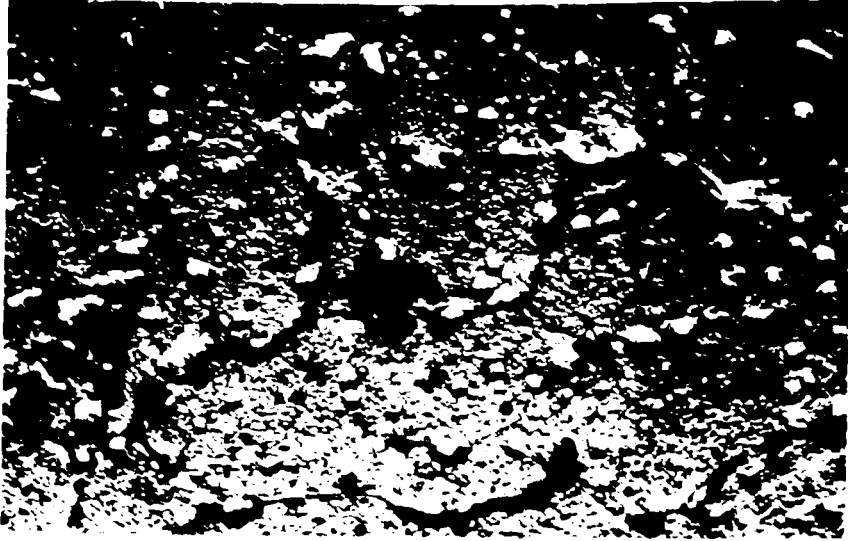
20 μ

6,5 heures à 1400 °C



20 μ

6,5 heures à 1800 °C



10 μ

6,5 heures à 2100 °C

FIG:14 MICROGRAPHIE OPTIQUE
ÉCHANTILLON D'(UC)

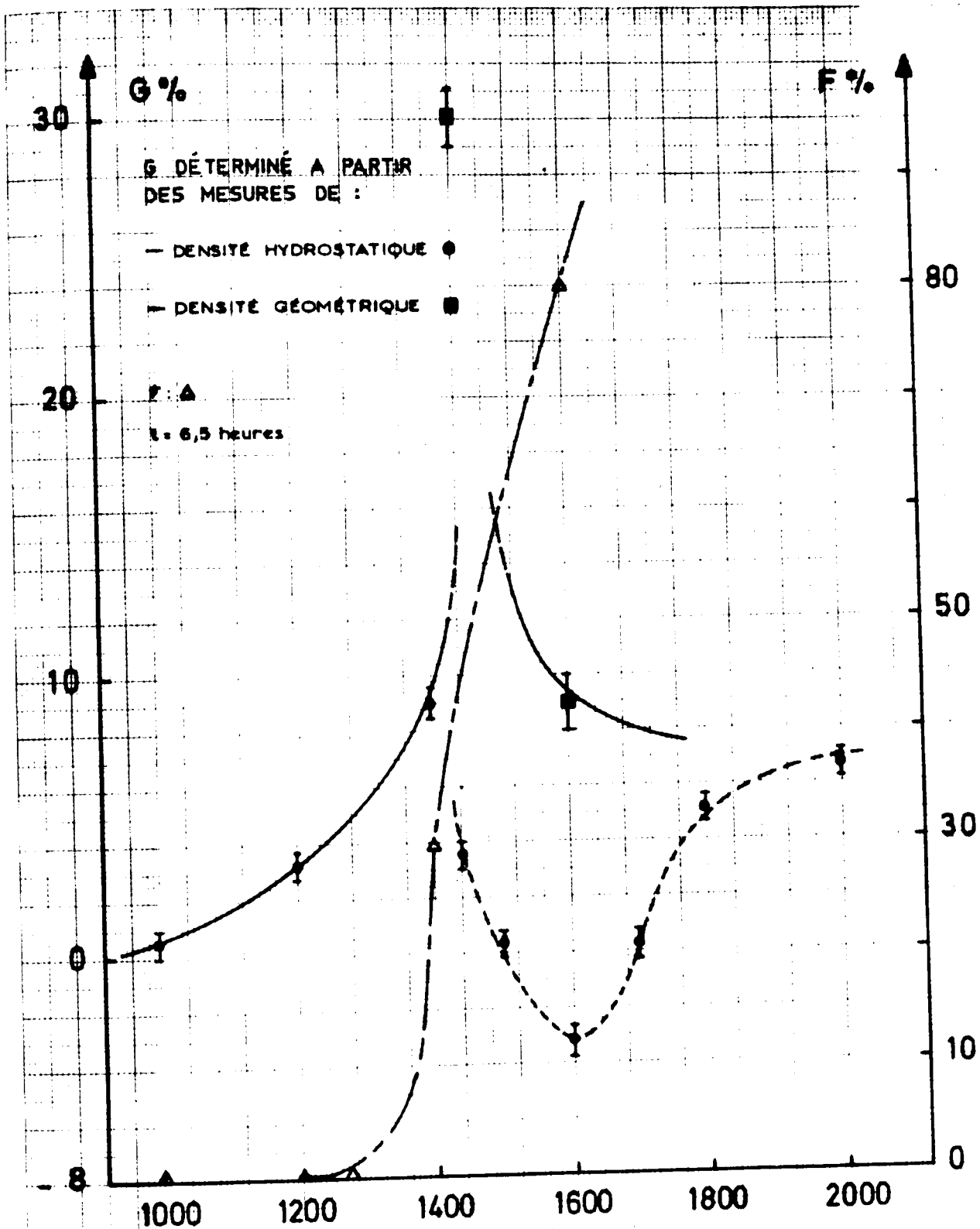
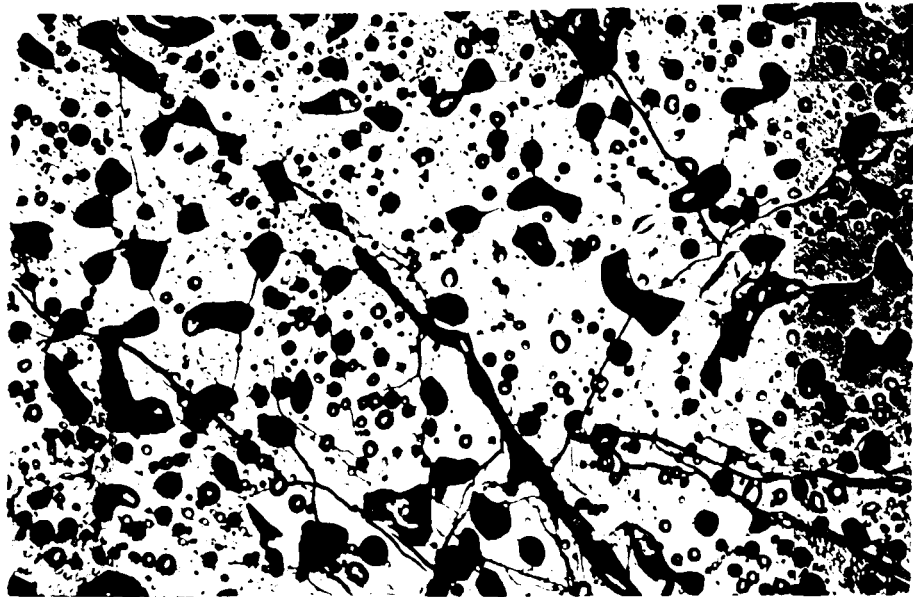
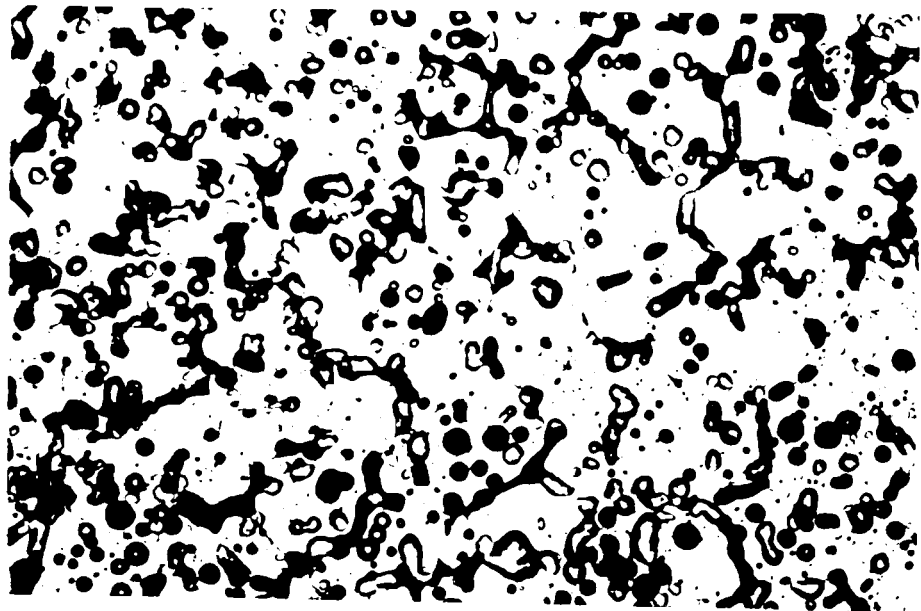


FIG: 15 FRACTION DE GAZ DE FISSION DÉGAGÉS
 ET GONFLEMENT DU CARBURE CAMILLE
 PAR RECUITS ISOCHRONES APRÈS
 IRRADIATION



20 μ

FIG:16 MICROGRAPHIE OPTIQUE
ÉCHANTILLON D'(U,Pu)C RECUIT A 1400°C ($t_r=6,5$ h)



20 μ

FIG:17 MICROGRAPHIE OPTIQUE
ÉCHANTILLON D'(U,Pu)C RECUIT A 1600°C ($t_r=6,5$ h)

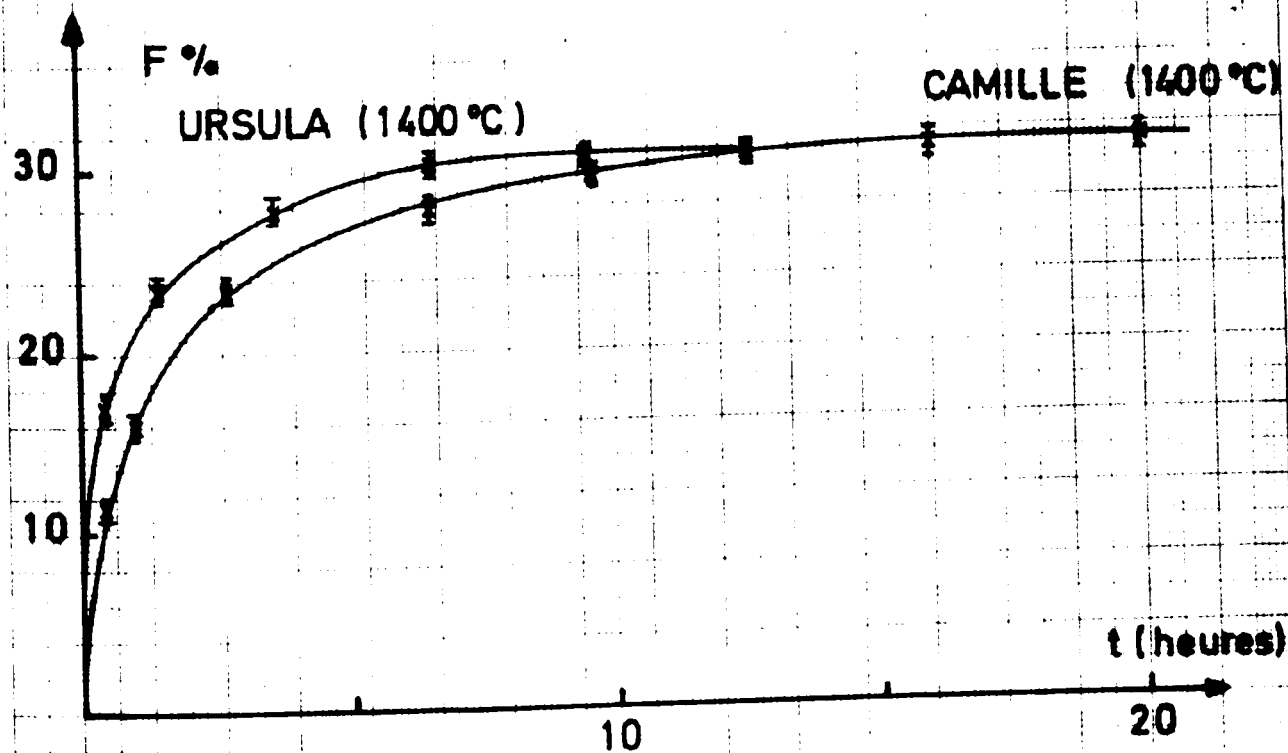
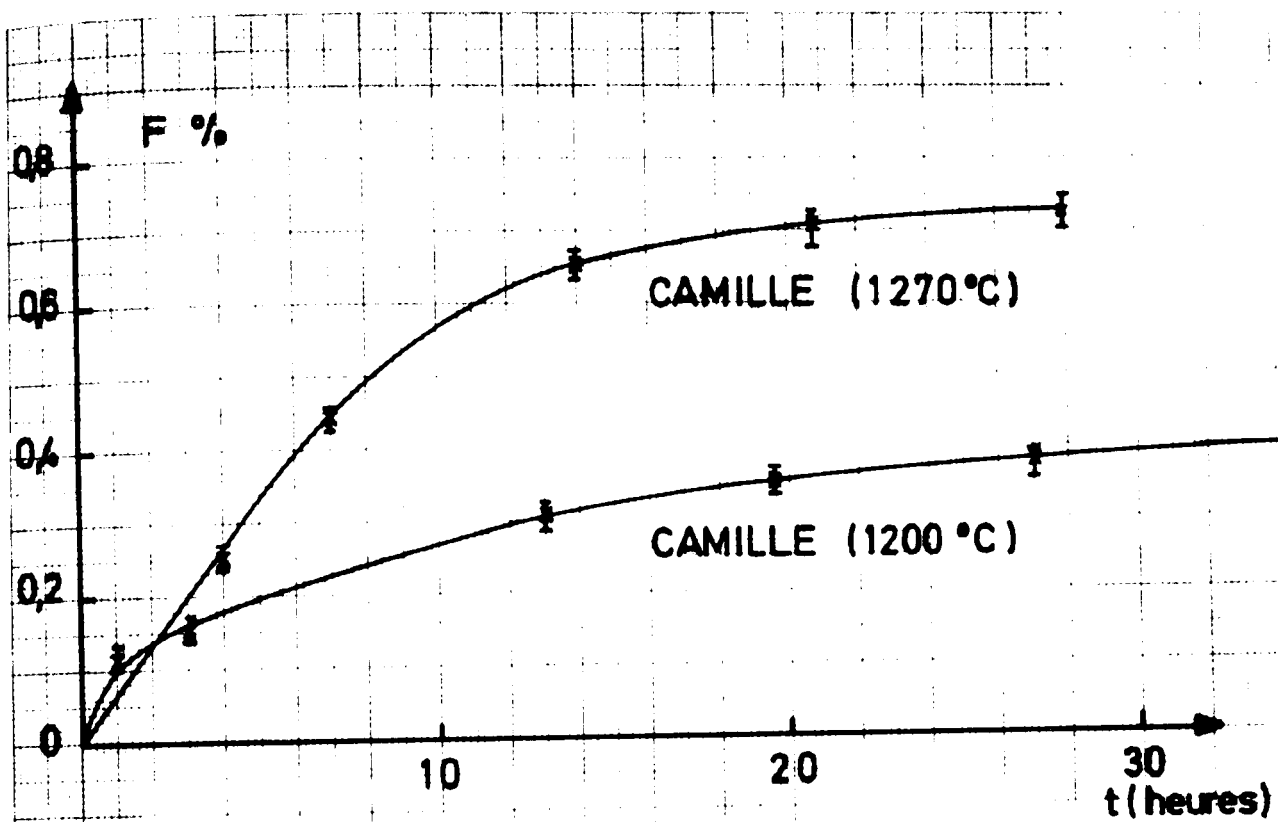


FIG: 18

**FRACTION DE GAZ DÉGAGÉS
PAR RECUITS ISOTHERMES**

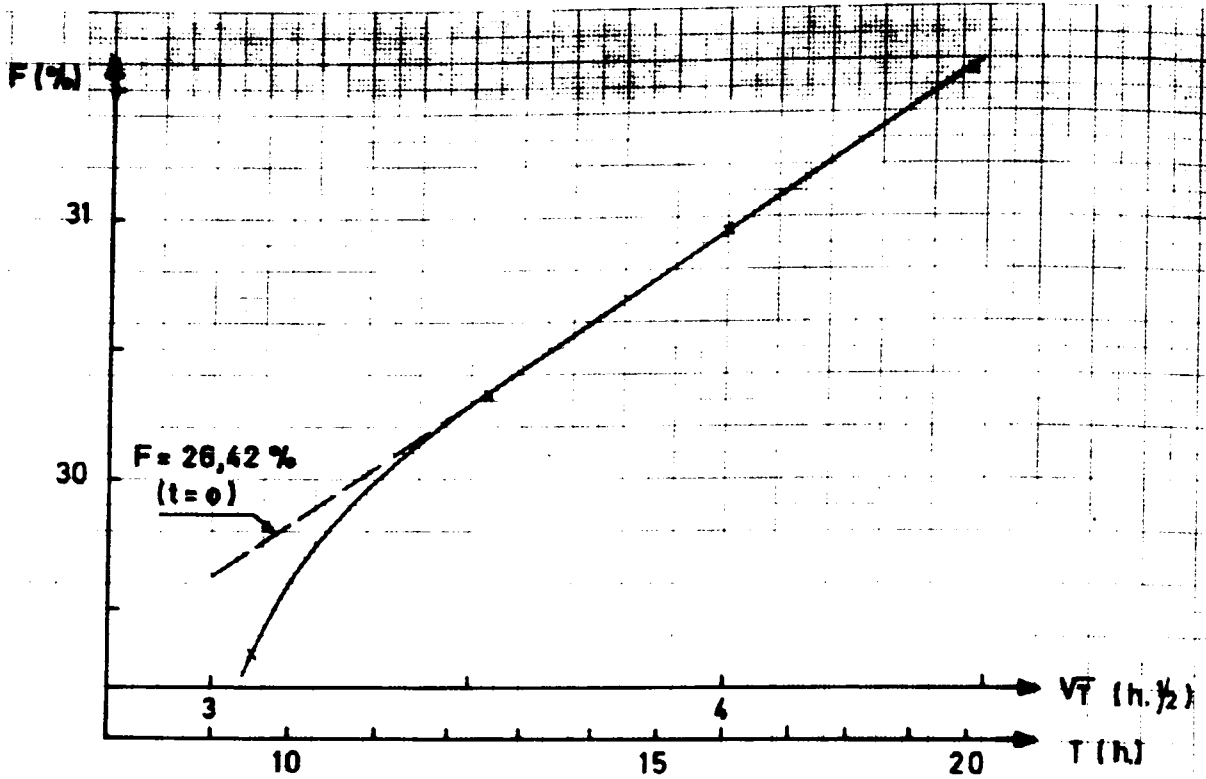


FIG: 19 FRACTION DE GAZ DÉGAGÉS EN FONCTION DE LA RACINE CARRÉE DU TEMPS (EXPÉRIENCE CAMILLE $T = 1400\text{ }^{\circ}\text{C}$)

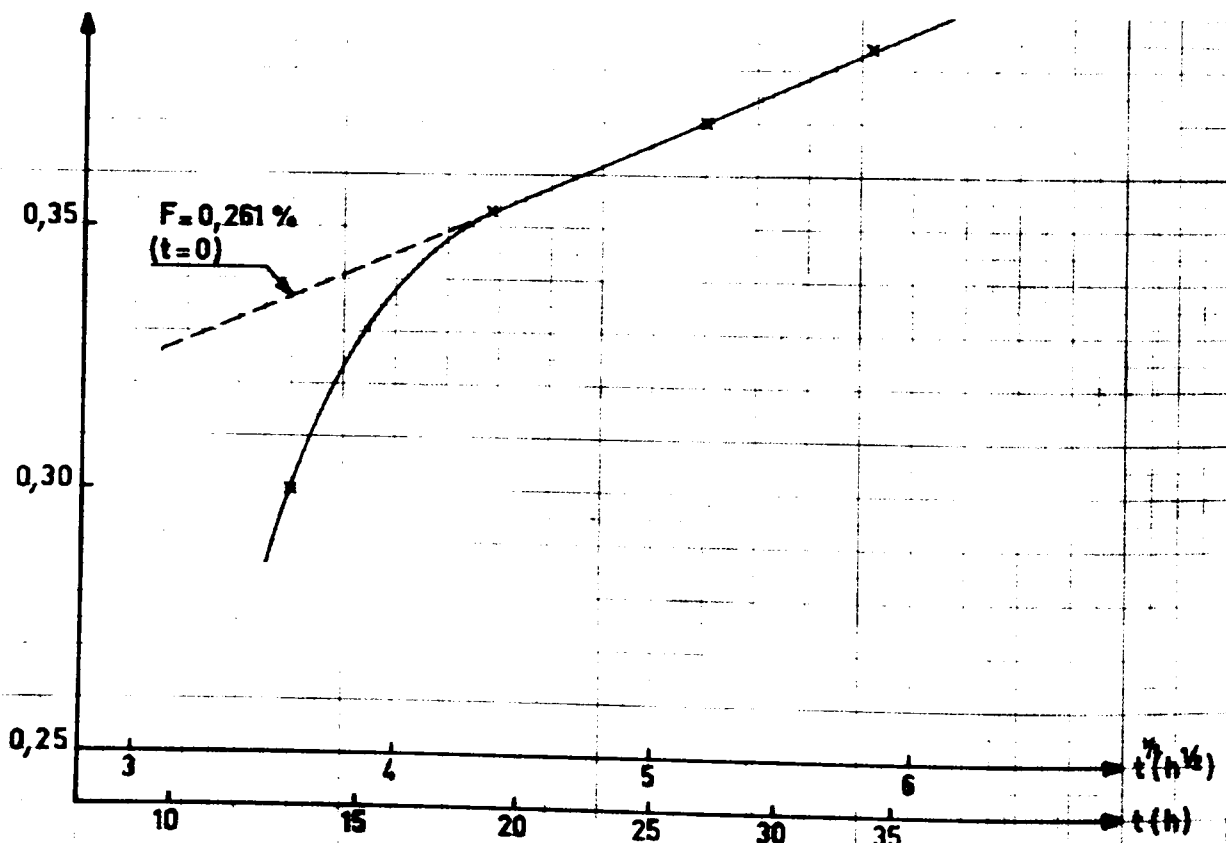


FIG: 19 Bis FRACTION DE GAZ DÉGAGÉS EN FONCTION DE LA RACINE CARRÉE DU TEMPS (CAMILLE $T = 1200\text{ }^{\circ}\text{C}$)

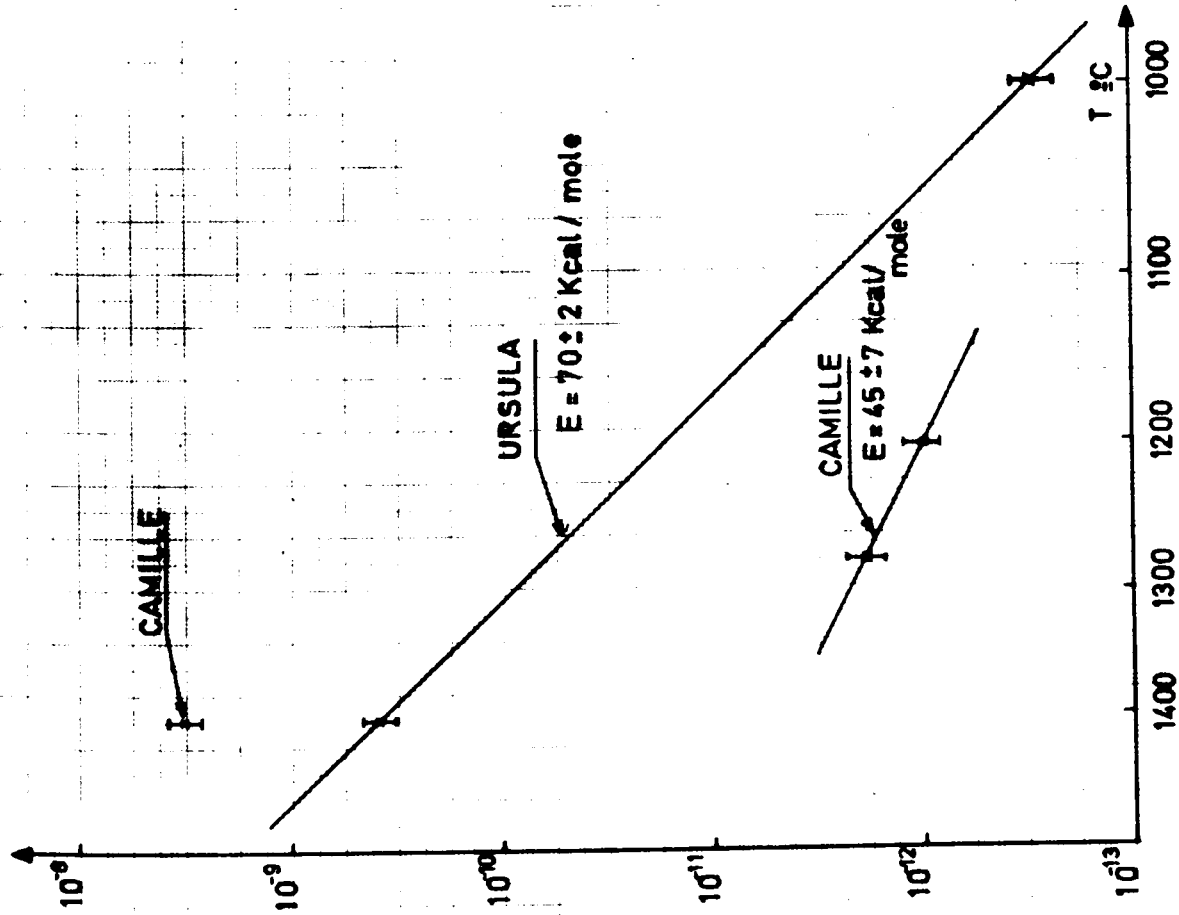


FIG: 20 COEFFICIENT DE DIFFUSION APPARENT DE (Xe + Kr) DANS URSULA ET CAMILLE

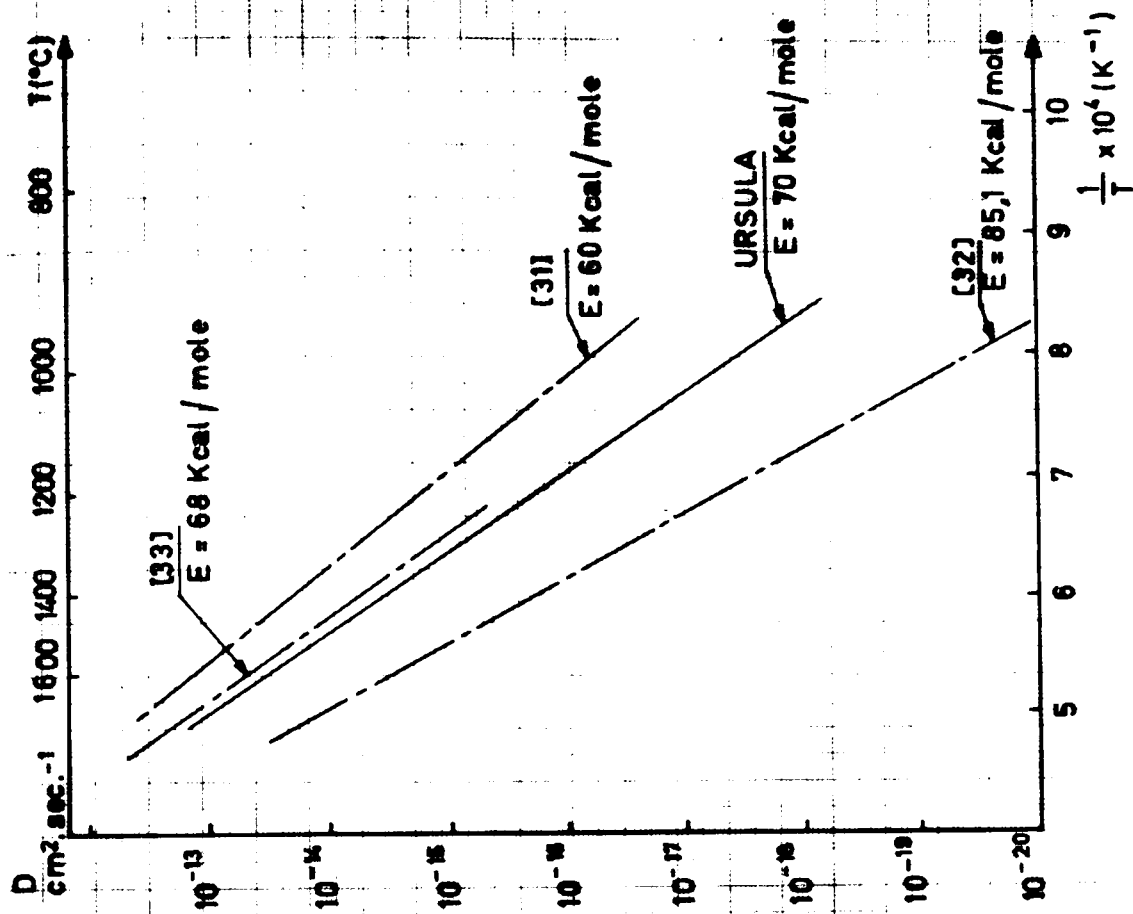


FIG: 21 COEFFICIENT DE DIFFUSION DES Xe ET Kr DANS LES CARBURES D'URANIUM

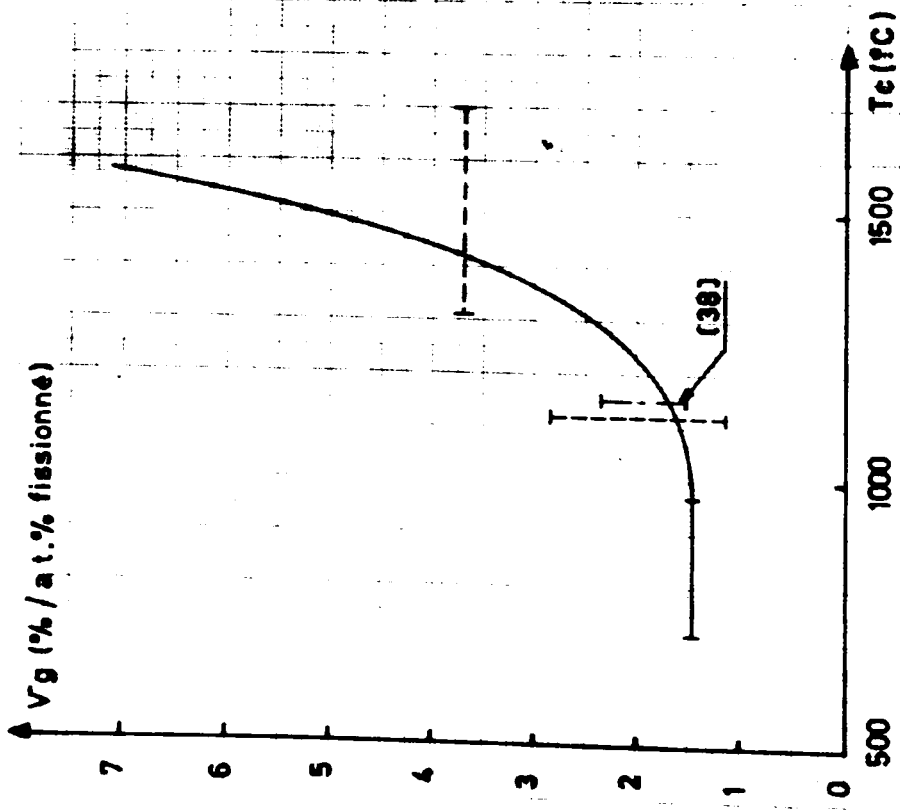


FIG. 22 GONFLEMENT DU CARBURE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE CENTRALE [37]

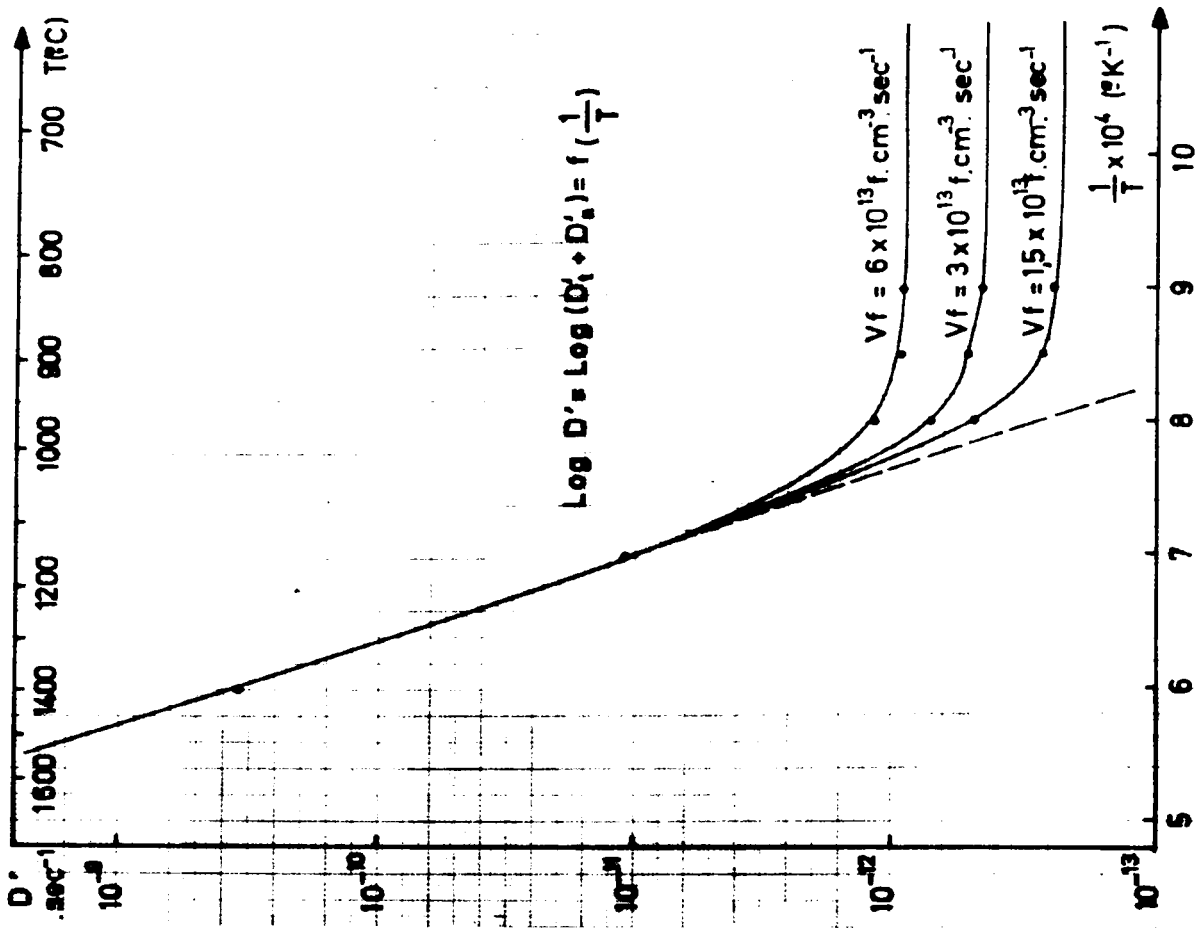


FIG. 23 COEFFICIENT DE DIFFUSION APPARENT SOUS IRRADIATION POUR DIFFÉRENTES VALEURS DE LA VITESSE DE FISSION

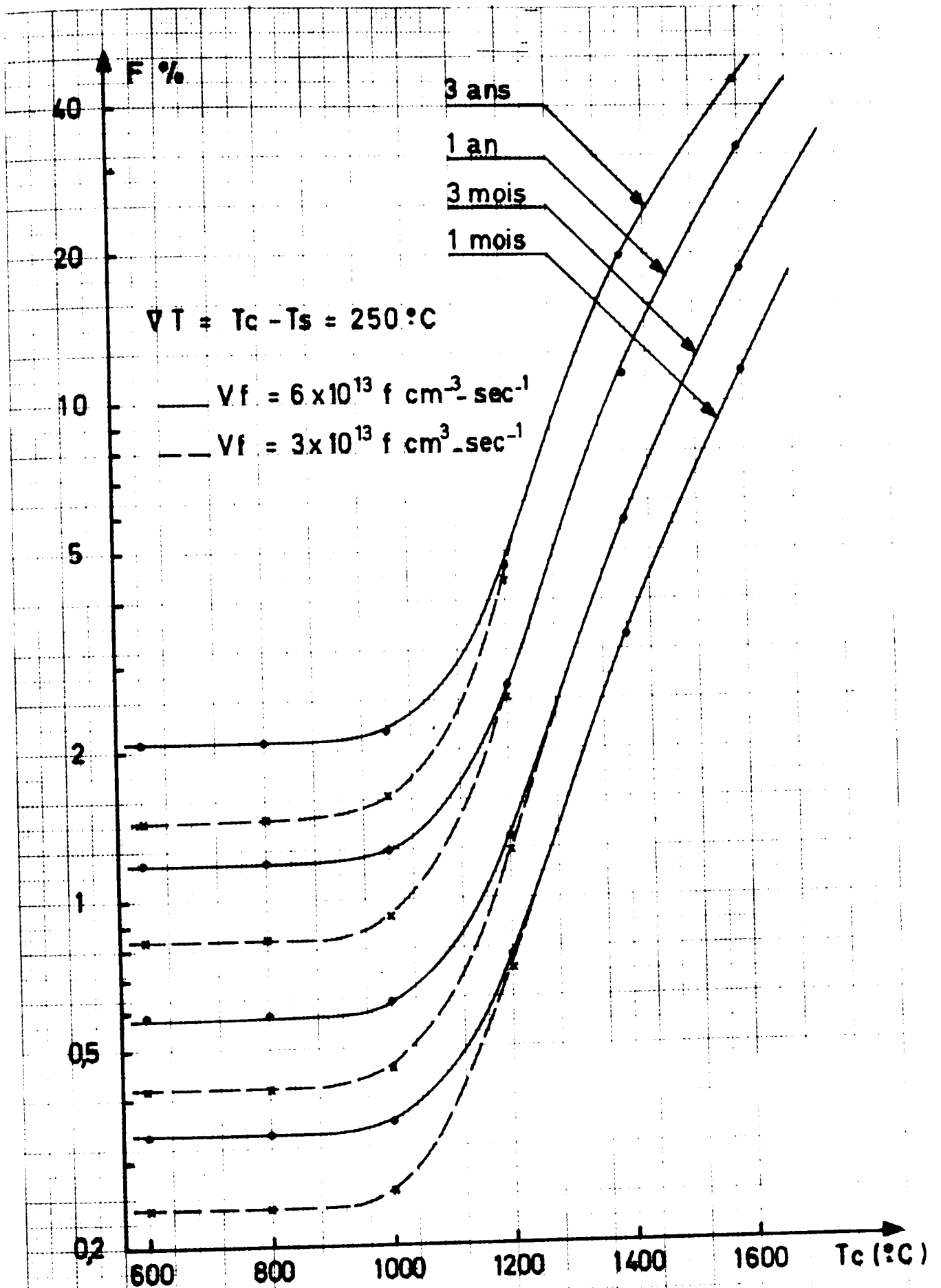


FIG. 24 FRACTION DE GAZ DÉGAGÉS EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE CENTRALE

Page 81, 988

edit 1. say 700-1000