

C. E. A. - D. M. E. C. N.  
DEPARTEMENT DE METALLURGIE  
DE GRENOBLE  
Service d'Elaboration et de Radiométrie

---

13 juin 1975

COMPTE RENDU DMG N° 72/75

COMPORTEMENT SOUS IRRADIATION D' $UO_2$   
A HAUTE TEMPERATURE POUR LA CONVERSION  
THERMOELECTRONIQUE

---

J. P. STORA  
Y. KAUFFMANN

Joint meeting of the American Nuclear Society and  
the Atomic Industrial Forum, San Francisco, USA,  
16-21 November 1975

CEA-CONF--3388

FR7601840

C. E. A. - D. M. E. C. N.

DEPARTEMENT DE METALLURGIE  
DE GRENOBLE

Service d'Elaboration et de Radiométallurgie

---

COMPORTEMENT SOUS IRRADIATION D' $UO_2$   
A HAUTE TEMPERATURE POUR LA CONVERSION  
THERMOELECTRONIQUE

---

Jean-Pierre STORA - C. E. A.  
Yves KAUFFMANN - C. E. A.

Papier devant être présenté à l'ANS Winter Meeting  
Novembre 1975 - San Francisco (California)

---

RESUME

Un élément combustible ayant la configuration d'un émetteur scellé à jupe type 300 We a été irradié pendant 5 000 heures dans le dispositif Cythère dans le réacteur Mélusine à Grenoble. Le taux de combustion atteint a été de  $5\ 000\ MW_j/t_U$ .

La restructuration du combustible a été suivie en cours d'irradiation par neutronographie puis étudiée sur des coupes micrographiques après irradiation. Le jeu combustible-gaine qui subsiste en fonctionnement est comblé par un processus d'évaporation-condensation puis balayage par des pores lenticulaires. L'étendue de la zone balayée et dédensifiée correspond bien à la vitesse de déplacement des pores lenticulaires dans les conditions de température et de gradient thermique de l'expérience.

Une métrologie de l'émetteur après irradiation montre une ovalisation maximale de la gaine de molybdène de 0,7 % attribuée à une interaction mécanique combustible-gaine. Ces résultats sont en désaccord formel avec ceux publiés par BMI qui prédisaient dans nos conditions expérimentales un gonflement catastrophique de l'oxyde.

## INTRODUCTION

La conservation de l'espace inter-électrode ou encore la stabilité dimensionnelle des éléments combustibles est un des buts importants de la mise au point des diodes pour la conversion thermoélectronique. Un des principaux sujets d'étude a été la recherche d'un combustible qui ne gonfle pas intrinsèquement ou qui ne déforme pas la gaine dans les conditions d'utilisation des émetteurs, c'est-à-dire température de surface environ 1 600 °C, taux de combustion voisin de 10 000 MWj/t<sub>U</sub>, durée de vie de 5 000 à 10 000 heures.

Différents types de combustible ont été étudiés et irradiés aux Etats-Unis et en Europe, en particulier UC et (U, Zr)C et des cermets UO<sub>2</sub>-Mo et UO<sub>2</sub>-W. En France, un programme d'irradiation de cermets denses et poreux UO<sub>2</sub>-Mo a été développé [ 1, 2 ]. La voie de l'UO<sub>2</sub> massif semblait abandonnée après les travaux de BMI qui attribuait à UO<sub>2</sub> un important gonflement sous irradiation à haute température et à faible taux de combustion [ 3 ]. Pour vérifier ces résultats, un élément combustible chargé à l'UO<sub>2</sub> massif a été irradié.

I - L'irradiation a été effectuée dans le dispositif Cythère 4 [ 4 ] et dans le réacteur Mélusine à Grenoble. Le schéma de la partie irradiée est donné figure 1. Le combustible se présente sous forme d'un tube d'UO<sub>2</sub> enrichi à 9,7 %, de diamètre 7,2 x 11,7 mm, de hauteur 9,2 mm et de densité 10,62. La gaine est en molybdène Climax fondu à l'arc, de diamètre 12 x 16 mm, recouverte de 0,2 mm de tungstène pyrodéposé. Le jeu diamétral combustible gaine à froid est de 0,15 mm. La température centrale est mesurée par un thermocouple W Re 5 % - W Re 26 %. L'émetteur était primitivement scellé, mais au bout de 300 heures d'irradiation une fuite s'est déclarée et il a fonctionné comme un élément combustible ventilé.

2 - Cythère 4 a été irradié pendant 5 068 heures et a atteint un taux de combustion de  $5\,500 \text{ MWj/t}_{\text{U}}$ . Il a subi 48 cyclages thermiques lents dont 43 par suite du fonctionnement hebdomadaire du réacteur et 4 chocs thermiques. La puissance moyenne a été de  $245 \text{ W cm}^{-3}$  ou  $160 \text{ W cm}^{-1}$ .

L'histoire thermique de l'irradiation est la suivante :

- de 0 à 120 h : une température centrale de l'oxyde mesurée de  $1\,965^{\circ}\text{C}$  une température de surface calculée de  $1\,645^{\circ}\text{C}$ , un jeu à chaud de  $60 \mu\text{m}$ , un coefficient d'échange de  $0,1 \text{ W cm}^{-2} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$  et une température de surface d'émetteur de  $1\,005^{\circ}\text{C}$ .
- de 120 à 940 h : le jeu combustible-gaine est progressivement rattrapé, la température centrale est maintenue autour de  $1\,850\text{-}1\,900^{\circ}\text{C}$ , la différence de température entre le centre de l'oxyde et la surface du molybdène est estimée à  $260^{\circ}\text{C}$ , la température de gaine varie entre  $1\,600$  et  $1\,650^{\circ}\text{C}$ .
- de 940 à 1 900 h : le rattrapage de jeu se continue. Des déplacements de matière par évaporation condensation s'effectuent, la cavité centrale de l'oxyde se réorganise morphologiquement ainsi qu'on le voit sur les neutronographies.
- de 1 900 à 5 058 h : le combustible évolue lentement vers la géométrie et la température d'équilibre. Le thermocouple central cesse de fonctionner au bout de 3 000 heures. Les températures moyennes sont :  
T centrale  $\text{UO}_2$   $1\,850^{\circ}\text{C}$ , T gaine  $1\,660^{\circ}\text{C}$ .

3 - Une métrologie après irradiation montre une ovalisation de la gaine. Les valeurs extrêmes de diamètre sont  $16,03 \text{ mm}$  et  $16,14 \text{ mm}$ , soit une déformation maximale de  $0,6 \%$ .

L' $\text{UO}_2$  se présente sous forme d'une zone corticale épousant strictement les irrégularités de la gaine, zone poreuse formée de grains basaltiques dont les pores lenticulaires dessinent une frontière circulaire très irrégulière. Une zone interne dont les grains sont orientés dans le gradient thermique et dont les joints sont soulignés par de petits pores alignés.

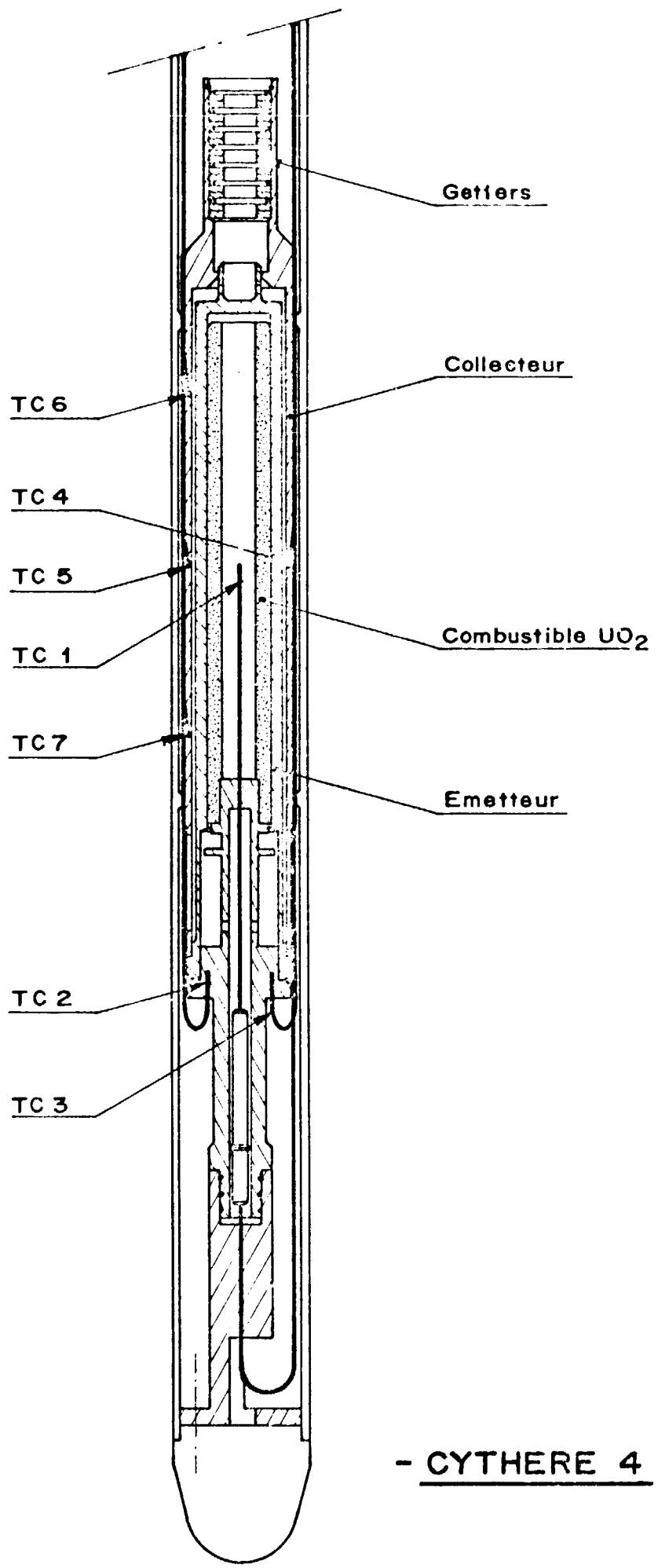
La zone corticale d'environ 0,75 mm d'épaisseur s'est formée grâce au jeu combustible-gaine au début de l'irradiation de la manière suivante : l' $\text{UO}_2$  s'évapore de la surface du combustible et se dépose sur la gaine plus froide, puis il se forme des ponts de matière entre l' $\text{UO}_2$  déposé sur la gaine et la surface du tube d'oxyde. Il se crée une zone très poreuse et très fragile. Cette couche évolue en cavités fermées qui produisent des pores lenticulaires qui balayent cette zone corticale et se propagent vers le centre. Ce processus est tout à fait semblable à celui qui produit la guérison de fissures dans l' $\text{UO}_2$ . On a calculé la vitesse de déplacement des pores lenticulaires dans les conditions de l'expérience. Si cette vitesse est en moyenne de  $4 \cdot 10^{-9} \text{ cm s}^{-1}$ , la distance balayée de 0,75 mm l'a été en 5 200 h, ce qui est en bon accord avec la durée de l'expérience. Nous avons là un phénomène de rattrapage de jeu par évaporation qui est particulier aux éléments combustibles fonctionnant à haute température.

4 - HILBERT et al [3] avaient développé un modèle de gonflement de l' $\text{UO}_2$  basé sur l'augmentation de volume due à de petites bulles de gaz de fission qui sont balayées par des pores lenticulaires qui génèrent des grains basaltiques purifiés et denses. Ce phénomène est répétitif. Appliqué à notre expérience, ce mécanisme devrait donner un gonflement d'environ 10 % pour  $1,5 \cdot 10^{20}$  fissions  $\text{cm}^{-3}$  et une température de surface d'oxyde de 1 650°C. En fait, comme nous l'avons montré, le balayage par les pores lenticulaires est un phénomène lent qui n'affecte qu'une faible

zone du combustible et dont l'origine est le rattrapage du jeu. Nous n'observons aucun gonflement du combustible et la faible ovalisation de la gaine nous l'attribuons à une déformation mécanique liée aux cyclages thermiques. Les déformations des gaines observées par BMI ne nous paraissent pas liées au gonflement du combustible, mais vraisemblablement à un rochet radial.

En conclusion, contrairement à certaines idées, l' $\text{UO}_2$  reste un combustible très valable pour la conversion thermoélectronique. Un émetteur fonctionnant à une température de surface de  $1650^\circ\text{C}$  et subissant de nombreux cyclages thermiques peut dépasser 5 000 heures de durée de vie sans déformation catastrophique.

- 
- [ 1 ] B. FRANCOIS, P. CHENEBAULT, Y. KAUFFMANN, J.P. STORA -  
Comportement en pile de cermets  $\text{UO}_2$ -Mo -  
3<sup>nd</sup> Int. Conf. on Thermionic Elect. Power Gen. -  
Julich, June 5-9 1972.
- [ 2 ] J.P. STORA, Y. KAUFFMANN  
Behaviour under irradiation of  $\text{UO}_2$  Mo porous cermet for thermionic  
application  
1975 Thermionic Conversion Specialists Meeting - 1-3 sept. 1975 -  
Eindhoven (Netherlands).
- [ 3 ] R.F. HILBERT, V.W. STORBROK, W. CHUBB, D.L. KELLER -  
Mechanisms of swelling and gas release in uranium dioxide.  
J. N. M. 38 (1971) 24-34.
- [ 4 ] Y. KAUFFMANN, J.P. DURAND, J.P. STORA, B. FRANCOIS -  
Cythère experiment : description of the device and preliminary  
results - Thermionic Conv. Spec. Conf., 4-7 Oct. 1971,  
San Diego (California).



- CYTHERE 4 -

Fig. 1

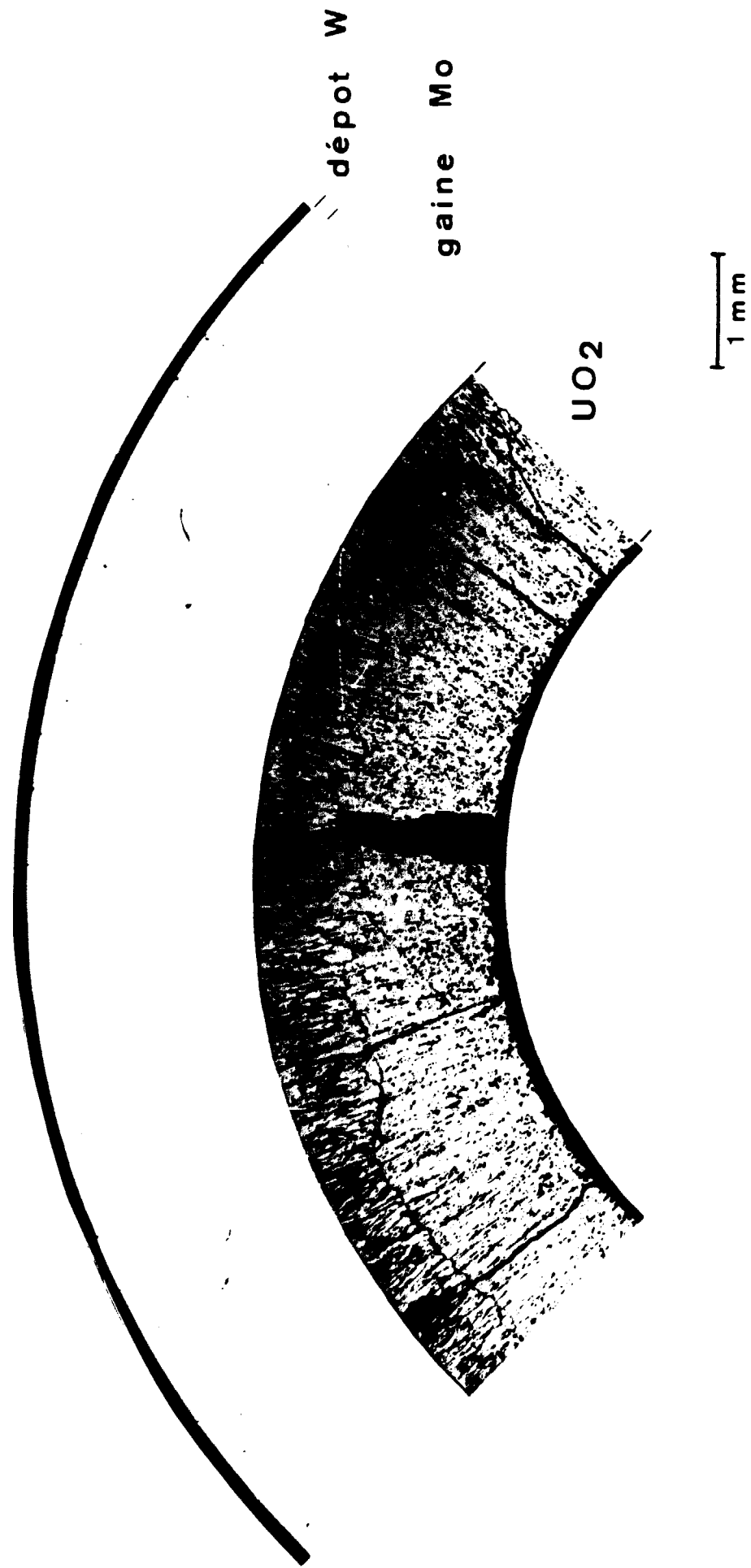


Fig. 2 Macrographie de CYTHERE 4 coupe transversale