



Commissariat à l'Énergie  
N° de dépôt : 2611/92  
FR 980 3351  
I.I.D.D.

939003

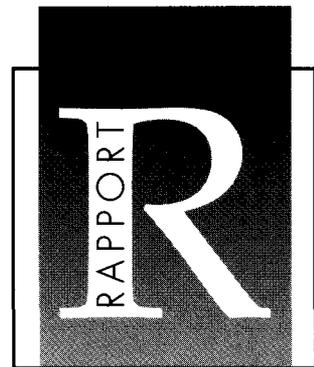
**TRAITEMENTS THERMIQUES DE  
L'OXYDE D'URANIUM IRRADIÉ EN  
RÉACTEUR À EAU PRESSURISÉE :  
GONFLEMENT ET RELÂCHEMENT  
DES GAZ DE FISSION**

*par*

**Isabelle ZACHARIE**

DIRECTION DES RÉACTEURS NUCLÉAIRES  
DIRECTION DE MÉCANIQUE ET DE TECHNOLOGIE  
SERVICE D'ÉTUDES DES MATÉRIAUX IRRADIÉS  
LABORATOIRE D'ÉTUDES ET DE  
CARACTÉRISATION DES MATÉRIAUX

CEA/Saclay



**RAPPORT  
CEA-R-5769**

DIRECTION DE L'INFORMATION  
SCIENTIFIQUE ET TECHNIQUE

CEA/SACLAY 91191 GIF-SUR-YVETTE CEDEX FRANCE

DIRECTION DES RÉACTEURS NUCLÉAIRES

**1997**

**RAPPORT CEA-R-5769- Isabelle ZACHARIE**

**"TRAITEMENTS THERMIQUES DE L'OXYDE D'URANIUM IRRADIÉ DANS UN RÉACTEUR À EAU PRESSURISÉE (R.E.P.) : Gonflement et relâchement des gaz de fission"**

*Sommaire* - Afin de maintenir à un niveau maximal de sûreté les réacteurs à eau pressurisée, il est nécessaire de comprendre le phénomène d'interaction mécanique et chimique entre l'élément combustible et sa gaine sous l'effet d'une élévation brutale de température, due à un transitoire de puissance. Dans ce processus, le gonflement de l'oxyde d'uranium occupe une place importante. Il a pour origine une précipitation sous forme de bulles de gaz de fission, qui, lorsqu'ils accèdent à l'extérieur, sont relâchés. C'est pourquoi l'objectif de cette thèse consiste à acquérir une meilleure connaissance des mécanisme mis en jeu.

Des échantillons d'oxyde d'uranium, issus d'un combustible ayant fonctionné pendant deux cycles, ont tout d'abord subi des traitements thermiques entre 1100°C et 1700°C pour des temps de traitement variant de cinq minutes à dix heures. L'évolution de la quantité de gaz relâchés en fonction du temps a été déterminée lors de chaque traitement. La confrontation de ces résultats expérimentaux avec un modèle numérique existant s'étant révélée satisfaisante, il apparaît que le relâchement, après formation de tunnels aux joints de grains, est contrôlé par la diffusion. Les échantillons ont fait ensuite l'objet de mesures de gonflement. Les examens micrographiques des échantillons montrent que les bulles sont intergranulaires, de forme lenticulaire. Le gonflement mesuré pouvant s'expliquer par la seule coalescence des bulles, un modèle a été développé. Il aboutit à une équation permettant d'obtenir le gonflement intergranulaire d'un combustible ayant fonctionné deux cycles en réacteur en fonction du temps et de la température.

L'étude entreprise donne donc la possibilité d'interpréter le comportement des gaz de fission, lors d'une élévation de température.

*1997 - Commissariat à l'Energie Atomique - France*

**RAPPORT CEA-R-5769 - Isabelle ZACHARIE**

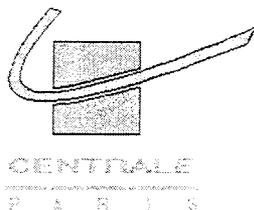
**"HEAT TREATMENTS OF IRRADIATED URANIUM OXIDE IN A PRESSURISED WATER REACTOR (P.W.R.) : Swelling and Fission gas release"**

*Summary* - In order to keep pressurised water reactors at a top level of safety, it is necessary to understand the chemical and mechanical interaction between the cladding and the fuel pellet due to a temperature increase during a rapid change in reactor. In this process, the swelling of uranium oxide plays an important role. It comes from a bubble precipitation of fission gases which are released when they are in contact with the outside. Therefore, the aim of this thesis consists in acquiring a better understanding of the mechanisms which come into play.

Uranium oxide samples, from a two cycles irradiated fuel, first have been thermal treated between 1000°C and 1700°C for 5 minutes to ten hours. The gas release amount related to time has been measured for each treatment. The comparison of the experimental results with a numerical model has proved satisfactory : it seems that the gases release, after the formation of intergranular tunnels, is controlled by the diffusion phenomena. Afterwards, the swelling was measured on the samples. The microscopic examination shows that the bubbles are located in the grain boundaries and have a lenticular shape. The swelling can be explained by the bubbles coalescence and a model was developed based on this observation. An equation allows to calculate the intergranular swelling in function of time and temperature.

The study gives the opportunity to predict the fission gases behaviour during a fuel temperature increase.

*1997 - Commissariat à l'Energie Atomique - France*



**THESE**  
présentée par

**Isabelle ZACHARIE**

pour l'obtention du

**GRADE DE DOCTEUR**

Spécialité : MECANIQUE ET MATERIAUX

---

**TRAITEMENTS THERMIQUES DE L'OXYDE D'URANIUM IRRADIE  
EN REACTEUR A EAU PRESSURISEE**

**GONFLEMENT ET RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION**

---

Soutenue le 27 Mars 1997 devant la Commission d'Examen :

Dominique FRANÇOIS	Président
Daniel BARON	Rapporteur
Hansjoachim MATZKE	Rapporteur
Michel COSTER	Directeur de thèse
Michel GROOS	Directeur de thèse
Patrick COMBETTE	Examineur
Sylvie LANSIART	Examineur
Maria TROTABAS	Examineur

*Thèse préparée au sein du Laboratoire d'Etudes et de Caractérisation des Matériaux  
DMT/SEMI CEA-Saclay*

Commissariat à l'Energie Atomique  
Centre d'Etudes de Saclay  
Département de Mécanique et de Technologie  
Service d'Etudes des Matériaux Irradiés  
Laboratoire d'Etudes et de Caractérisation des Matériaux  
91191 GIF SUR YVETTE Cedex

Ecole Centrale des Arts et Manufactures  
Grand Etablissement sous tutelle  
de l'Education Nationale  
Grande Voie des vignes  
92295 Châtenay-Malabry Cedex

- Rapport CEA-R-5769-

CEA Saclay  
Direction des Réacteurs Nucléaires  
Direction de Mécanique et de Technologie  
Service d'Études des Matériaux Irradiés  
Laboratoire d'Etudes et de Caractérisation des Matériaux

TRAITEMENTS THERMIQUES DE L'OXYDE D'URANIUM IRRADIÉ  
EN RÉACTEUR À EAU PRESSURISÉE :  
GONFLEMENT ET RELÂCHEMENT DES GAZ DE FISSION

par

Isabelle ZACHARIE

- Octobre 1997 -

## Remerciements

Ce travail a été réalisé au Service d'Etudes des Matériaux irradiés au C.E.A. à Saclay, dirigé par Monsieur COMBETTE, puis par Madame HOUDAILLE, dans le laboratoire d'Etudes et de Caractérisations des Matériaux de Monsieur GIANNETTO puis de Monsieur ROYER. Je les remercie de m'avoir donné toutes facilités pour l'exécution de cette étude.

Je remercie, plus particulièrement, Monsieur COMBETTE, Directeur scientifique du cycle du combustible, à l'origine de ce sujet, qui a toujours suivi son évolution avec grand intérêt et m'a assuré un environnement scientifique et humain de grande qualité.

Je suis très reconnaissante à Madame TROTABAS, expert combustible qui a bien voulu accepter l'encadrement de la thèse au sein du C.E.A. et qui a mis sa compétence au service de ce travail.

J'exprime ma reconnaissance à Madame LANSIART, Chef de Service adjointe, pour son aide scientifique et ses suggestions qui m'ont été précieuses.

J'adresse mes remerciements à Monsieur FRANCOIS, Professeur à l'Ecole Centrale de Paris, pour ses conseils et l'aide qu'il m'a prodigués sans ménager son temps et pour avoir accepté la présidence du jury.

Je tiens à remercier, Monsieur GROOS, Professeur à l'Ecole Centrale et Monsieur COSTER, Professeur à l'Université de CAEN qui ont co-dirigé mon travail, pour leurs aides scientifiques et leurs conseils.

Je remercie vivement Monsieur BARON, Ingénieur chercheur Senior et Monsieur MATZKE, Directeur de recherche, pour avoir accepté d'être rapporteurs de la thèse. Je leur exprime ma gratitude pour l'intérêt qu'ils ont manifesté à l'égard de cette étude.

Je tiens à remercier B. KAPUSTA et N. HOURDEQUIN du LEMO pour les fructueuses discussions que j'ai pu avoir avec eux.

J'exprime toute ma reconnaissance à L. BELIN pour sa participation déterminante dans le domaine expérimental.

Une aide précieuse m'a été apportée par mes collègues du Laboratoire : J.M. BOYER pour la formation expérimentale ; F. COUVREUR et O. RABOUILLE pour leurs conseils.

Enfin je n'oublierai pas tous ceux qui m'ont permis de passer trois années dans une ambiance de travail très conviviale.

# TABLE DES MATIERES

<b>INTRODUCTION</b>	<b>6</b>
<b>CHAPITRE 1 : COMPORTEMENT DU COMBUSTIBLE <math>UO_2</math> EN REACTEUR A EAU PRESSURISEE (R.E.P.)</b>	<b>10</b>
I. LE COMBUSTIBLE DU REACTEUR A EAU PRESSURISEE (R.E.P.).....	12
I.1. Le crayon combustible [2] [3] .....	13
I.2. L'oxyde d'uranium [2] [3].....	13
II. LES MODES DE FONCTIONNEMENT DES R.E.P.....	14
II.1. Conditions normales de fonctionnement .....	14
II.2. Fonctionnement lors d'incidents ou d'accidents, transitoires de puissance.....	14
III. LES CONSEQUENCES DU FONCTIONNEMENT SUR LE COMBUSTIBLE ....	15
III.1. Formation des produits de fission .....	15
III.2. Gonflement .....	16
III.3. Relâchement.....	16
III.4. Interaction pastille - gaine (I.P.G.).....	17
<b>CHAPITRE 2 : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT</b>	<b>18</b>
I. BULLES DE GAZ DE FISSION .....	20
I.1. Définition.....	20
I.2. Equilibre de la bulle.....	22
I.2.1. Concentration en lacunes.....	22
I.2.2. Equation d'équilibre .....	22
II. PRINCIPAUX MECANISMES THEORIQUES DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION .....	23
II.1. Germination des bulles.....	24
II.1.1. Germination homogène .....	24
II.1.2. Germination hétérogène .....	24
II.2. Transport du gaz vers les joints de grains.....	24
II.2.1. Diffusion des atomes de gaz de fission.....	25
II.2.2. Migration des bulles dans le grain.....	25
II.3. Croissance des bulles par absorption d'atomes de gaz qui diffusent .....	27
II.4. Coalescence des bulles .....	28
II.5. Formation des tunnels.....	29
III. MODELES NUMERIQUES .....	29
III.1. Modèle de gonflement intragranulaire isotherme hors pile.....	29
III.2. Modèle de relâchement des gaz de fission isotherme hors pile.....	31
IV. SYNTHESE.....	32

**CHAPITRE 3 : DESCRIPTION COMPARATIVE DES TECHNIQUES DE  
MESURE DU GONFLEMENT** **33**

I. CONTRAINTES.....	35
I.1. Liées à l'environnement du laboratoire chaud.....	35
I.2. Liées aux échantillons .....	36
I.3. Liées à la distribution de la porosité.....	36
II. METHODES MACROSCOPIQUES .....	36
II.1. Méthode géométrique.....	37
II.2. Pycnométrie à mercure .....	37
II.3. Méthodes par pesée hydrostatique .....	37
II.3.1. Méthode classique.....	38
II.3.2. Méthode par pesée de la masse humide .....	38
II.3.3. Méthode avec vernissage.....	39
III. METHODES MICROSCOPIQUES : ANALYSE D'IMAGES .....	39
III.1. Définition .....	40
III.2. Relation stéréométrique.....	41
III.2.1. Fraction volumique .....	41
III.2.2. Relation entre la concentration en bulles et le nombre de bulles par unité de longueur de joints de grains .....	42
III.3. Principes généraux de l'analyse d'images .....	43
III.3.1. Acquisition et Traitement des images en niveaux de gris.....	43
III.3.2. Seuillage des images .....	44
III.3.3. Traitement des images binaires, notions de morphologie mathématique .....	44
IV. RESUME.....	45

**CHAPITRE 4 : RESULTATS EXPERIMENTAUX : MESURES DU  
GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT** **46**

I. CARACTERISTIQUES EXPERIMENTALES.....	50
I.1. Caractéristiques des échantillons .....	50
I.1.1. Caractéristiques de fabrication.....	51
I.1.2. Caractéristiques d'irradiation.....	51
I.2. Caractéristiques des traitements thermiques.....	52
I.2.1. Installation .....	53
I.2.2. Traitements thermiques .....	53
II. DETERMINATION DU RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION .....	54
II.1. Dispositif expérimental .....	54
II.2. Résultats.....	54
II.2.1. Détermination de la fraction de gaz de fission relâché .....	54
II.2.2. Incertitude expérimentale .....	55
II.2.3. Effet du temps de maintien.....	55
II.2.4. Effet de la température.....	56
II.3. Comparaison à d'autres études expérimentales.....	56
III. DETERMINATION DU GONFLEMENT PAR PESEE HYDROSTATIQUE.....	56

III.1. Dispositif expérimental .....	56
III.2. Principe .....	57
III.3. Qualification .....	58
III.4. Précision de la mesure .....	58
III.4.1. Calcul de l'incertitude de mesure sur la masse volumique de l'UO <sub>2</sub> .....	58
III.4.2. Calcul de l'incertitude de mesure sur le gonflement .....	58
III.5. Résultats .....	59
<b>IV. DETERMINATION DU GONFLEMENT PAR PESEE HYDROSTATIQUE AVEC VERNISSAGE .....</b>	<b>60</b>
IV.1. Principe .....	60
IV.2. Qualification .....	61
IV.2.1. Détermination de la masse volumique du vernis .....	61
IV.2.2. Application de la méthode à des échantillons d'oxyde d'uranium de masse volumique géométrique connue .....	62
IV.3. Précision de la mesure .....	63
IV.3.1. Calcul de l'incertitude de mesure sur la masse volumique de l'UO <sub>2</sub> .....	63
IV.3.2. Calcul de l'incertitude de mesure sur le gonflement .....	64
IV.4. Résultats .....	64
<b>V. DETERMINATION DU GONFLEMENT PAR ANALYSE D'IMAGES .....</b>	<b>64</b>
V.1. Dispositif expérimental .....	64
V.1.1. Le Microscope Electronique à Balayage (M.E.B.) .....	64
V.1.2. Analyseur d'images .....	65
V.2. Préparation des échantillons .....	66
V.2.1. Problèmes posés par l'irradiation .....	66
V.2.2. Préparation métallographique .....	67
V.2.3. Problèmes introduits par le polissage .....	67
V.3. Qualification de la mesure .....	67
V.3.1. Acquisition des images en niveaux de gris .....	67
V.3.2. Traitement automatique des images : Seuillage .....	70
V.3.3. Traitements des images binaires : Filtrage .....	71
V.3.4. Analyse .....	72
V.4. Précision de la mesure .....	73
V.4.1. Erreurs statistiques .....	73
V.4.2. Influence du seuillage sur la précision de la mesure .....	75
V.4.3. Influence de la mise au point .....	75
V.4.4. Erreurs dues à la préparation des échantillons .....	75
V.4.5. Bilan des incertitudes de la mesure .....	75
V.5. Résultats .....	75
V.5.1. Gonflement .....	76
V.5.2. Distribution de la porosité par granulométrie .....	76
V.6. Comparaison à d'autres études expérimentales .....	77
<b>VI. COMPARAISON DES DIFFERENTS RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS .....</b>	<b>77</b>
VI.1. Comparaison des résultats obtenus par les différentes méthodes .....	77
VI.2. Gonflement intragranulaire .....	78
VI.3. Porosité ouverte .....	78

VII. RESUME.....	79
------------------	----

**CHAPITRE 5 : EXAMENS MICROGRAPHIQUES ET INTERPRETATIONS DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT 81**

I. EXAMENS MICROGRAPHIQUES.....	84
I.1. Echantillons polis.....	84
I.1.1. Observations des bulles intergranulaires.....	85
a) Taille et forme des bulles.....	85
b) Nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains.....	85
c) Réseaux de bulles.....	85
I.1.2. Analyse quantitative des micrographies.....	85
a) Nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains.....	85
b) Taille des bulles.....	86
I.1.3. Observation des bulles intragranulaires.....	87
I.1.4. Taille des grains.....	88
I.2. Echantillons fracturés.....	88
I.2.1. Préparation des échantillons.....	88
I.2.2. Observations.....	89
II. INTERPRETATION DU RELACHEMENT ISOTHERME DES GAZ DE FISSION.....	89
II.1. Etude du relâchement des gaz de fission par diffusion.....	90
II.1.1. Détermination du mécanisme de transport du gaz vers les joints de grains... 90	
a) Confrontation du modèle avec les résultats relatifs au relâchement du Xénon.....	90
b) Analyse des points expérimentaux obtenus avec le Krypton.....	92
II.1.2. Analyse de la dispersion des points à 1715°C.....	92
II.1.3. Etude supplémentaire sur un même échantillon.....	93
II.2. Etude du relâchement des gaz de fission par formation de tunnels.....	93
II.3. Comparaison expérimentale des deux mécanismes de relâchement en présence.....	94
II.4. Analyse critique.....	94
II.4.1. Analyse de l'énergie d'activation apparente de la diffusion atomique.....	94
II.4.2. Comparaison à d'autres études expérimentales.....	95
II.5. Bilan.....	95
III. INTERPRETATION DU GONFLEMENT INTERGRANULAIRE.....	95
III.1. Croissance par coalescence ou (et) par absorption d'atomes.....	95
III.2. Modèle de gonflement par coalescence des bulles.....	98
III.3. Confrontation du modèle théorique aux points expérimentaux.....	103
III.3.1. Effet du temps de traitement.....	103
III.3.2. Effet de la température.....	104
IV. SYNTHÈSE DES MÉCANISMES DE GONFLEMENT ET DE RELACHEMENT.....	105
V. REPRESENTATIVITÉ DES TRAITEMENTS THERMIQUES APPLIQUÉS.....	107
<b>CONCLUSION</b> .....	<b>109</b>

<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</b>	<b>115</b>
<b>LISTE DES TABLEAUX ET FIGURES</b>	<b>121</b>
<b>ANNEXES</b>	<b>131</b>

## **INTRODUCTION**

## INTRODUCTION

La première barrière de confinement d'un réacteur à eau sous pression est la gaine qui entoure le combustible. Parmi les phénomènes pouvant entraîner sa dégradation, la corrosion sous contrainte est un des plus redoutés. Elle est engendrée par la présence d'un milieu agressif constitué de produits de fission corrosifs, comme l'iode par exemple, et d'une contrainte due à la poussée de la pastille sur la gaine.

Pendant le fonctionnement du réacteur à sa puissance nominale, différents facteurs contribuent à supprimer le jeu initial entre la pastille de combustible et la gaine :

- la dilatation différentielle du combustible toujours supérieure à celle de la gaine en raison d'une part, de la différence de température entre la pastille de combustible et la gaine refroidie par l'eau et d'autre part des coefficients de dilatation plus élevés pour le combustible d'oxyde d'uranium que pour la gaine ;

- le fluage de la gaine sous la pression de l'eau réduisant son diamètre ;
- le gonflement de la pastille combustible.

Dès lors que le jeu est supprimé, la pastille de combustible pousse sur la gaine. Toutefois, lorsque le réacteur fonctionne à puissance nominale, les contraintes dans la gaine restent peu élevées. Leur augmentation dans le temps est suffisamment lente pour qu'une relaxation ait lieu. En outre, les produits de fission à l'origine du milieu corrosif restent à l'état solide et ne se déposent pas sur la gaine.

Le risque est différent si un incident de fonctionnement provoque un transitoire de puissance. Dans ce cas, la puissance locale du réacteur s'élève brutalement, se stabilise pendant un temps plus ou moins long et retourne ensuite au niveau nominal.

Ce transitoire de puissance se traduit par une augmentation de la température à coeur du combustible et une hausse importante du gradient thermique radial entre le bord extérieur (« froid ») et le centre de la pastille (« chaud »).

La dilatation thermique du combustible entraîne alors une poussée forte de la pastille sur la gaine, d'où une augmentation importante de la contrainte. De plus, sous l'effet de la température et du gradient thermique, les gaz de fission peuvent diffuser et précipiter en

créant des bulles de gaz dans le combustible. Ces bulles engendrent alors un gonflement important de la pastille. Les gaz de fission peuvent aussi diffuser sous forme atomique, ou sous forme de bulles, jusqu'à une surface libre où ils sont relâchés à l'extérieur du combustible.

Le gonflement contribue à la poussée de la pastille sur la gaine. Le relâchement des produits de fission corrosifs et des gaz de fission peut, quant à lui, avoir plusieurs effets. Outre la création d'un milieu agressif, il peut aussi augmenter la pression à l'intérieur de la gaine, donc la contrainte dans cette dernière.

En définitive, le gonflement et le relâchement des gaz de fission amplifient le risque de rupture de gaine lors d'un transitoire de puissance. Il est donc nécessaire d'évaluer ce risque. A cet effet, des codes de calcul ont été mis au point. Ils sont souvent fondés sur des systèmes d'équations permettant de calculer le gonflement de la pastille et le relâchement des gaz de fission, en fonction de différents paramètres comme par exemple la température et le temps.

L'objectif de cette thèse est d'apporter une contribution à la compréhension des mécanismes de gonflement et de relâchement et de décrire l'effet de la température et du temps sur ces phénomènes. Pour atteindre cet objectif, on étudie l'influence de différents traitements thermiques sur un combustible d'oxyde d'uranium préalablement irradié en réacteur. Ce combustible comporte des atomes de gaz de fission, pouvant lors de ces traitements, faire gonfler le combustible et être relâchés.

Plus précisément, des échantillons issus d'un combustible de réacteur à eau pressurisée, ayant fonctionné en conditions normales pendant deux cycles, soit un taux de combustion de 25 GWj/tU, ont été traités en four de laboratoire à des températures allant de 1100°C à 1700°C pour des temps de 5 minutes à 10 heures. Le gonflement est calculé à partir de mesures de la fraction volumique occupée par les bulles en utilisant les techniques d'analyse d'images. A côté de cette technique considérée comme la méthode de référence, des techniques de pesées hydrostatiques sont utilisées et fournissent des informations complémentaires. En parallèle, les gaz de fission relâchés lors du traitement thermique sont récupérés et leur quantité est déterminée par spectrométrie de masse associée à une mesure volumétrique.

Dans un premier chapitre, nous présentons le combustible d'oxyde d'uranium et son comportement en réacteur à eau pressurisée afin de situer l'environnement du travail entrepris. Le chapitre 2 permet de faire le point bibliographique relatif aux mécanismes de gonflement et de relâchement. Dans le chapitre 3, on effectue un examen des différentes

techniques généralement mises en oeuvre pour la mesure du gonflement, afin de justifier les méthodes d'analyse choisies dans le présent travail et d'en évaluer a priori les possibilités.

Les chapitres 4 et 5 constituent le corps de la thèse. Dans le chapitre 4, on décrit d'abord, de manière détaillée, les dispositifs expérimentaux et les conditions d'analyse. On présente ensuite les résultats et on en fait une analyse critique. Ces résultats sont interprétés dans le chapitre 5, en s'appuyant sur l'étude de la structure du combustible. Cette interprétation aboutit à la validation d'un modèle numérique de relâchement des gaz de fission publié dans la littérature et, pour le gonflement, à la construction d'un modèle numérique engendré par les traitements thermiques.

---

**CHAPITRE 1**

---

**COMPORTEMENT DU COMBUSTIBLE  $\text{UO}_2$  EN REACTEUR  
A EAU PRESSURISEE (R.E.P.)**

## SOMMAIRE DU CHAPITRE 1

### COMPORTEMENT DU COMBUSTIBLE UO<sub>2</sub> EN REACTEUR A EAU PRESSURISEE (R.E.P.)

I. LE COMBUSTIBLE DU REACTEUR A EAU PRESSURISEE (R.E.P.) .....	12
I.1. Le crayon combustible .....	13
I.2. L'oxyde d'uranium.....	13
II. LES MODES DE FONCTIONNEMENT DES R.E.P. ....	14
II.1. Conditions normales de fonctionnement .....	14
II.2. Fonctionnement lors d'incidents ou d'accidents, transitoires de puissance.....	14
III. LES CONSEQUENCES DU FONCTIONNEMENT SUR LE COMBUSTIBLE.....	15
III.1. Formation des produits de fission.....	15
a) Produits de fission solides .....	15
b) Produits de fission volatils .....	15
c) Produits de fission gazeux.....	15
III.2. Gonflement.....	16
III.3. Relâchement .....	16
III.4. Interaction pastille - gaine (I.P.G.).....	17

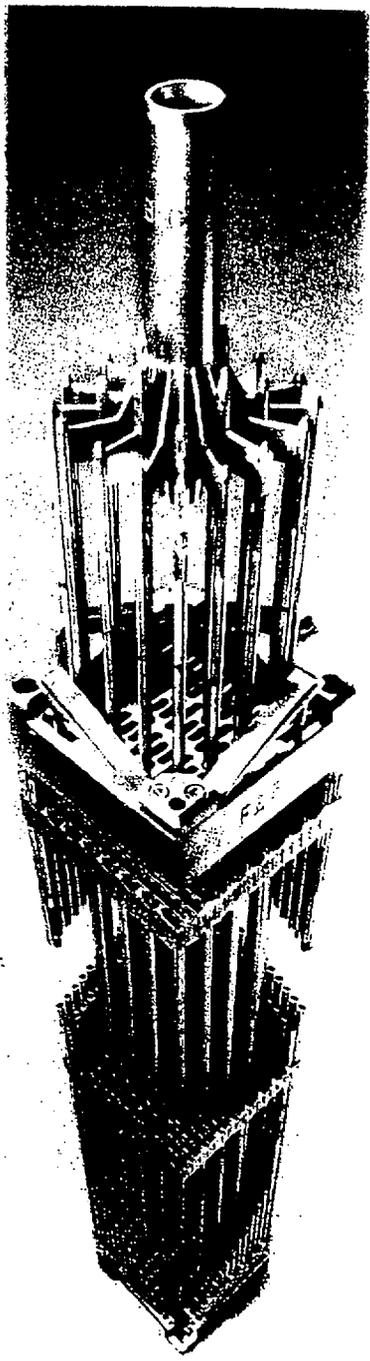
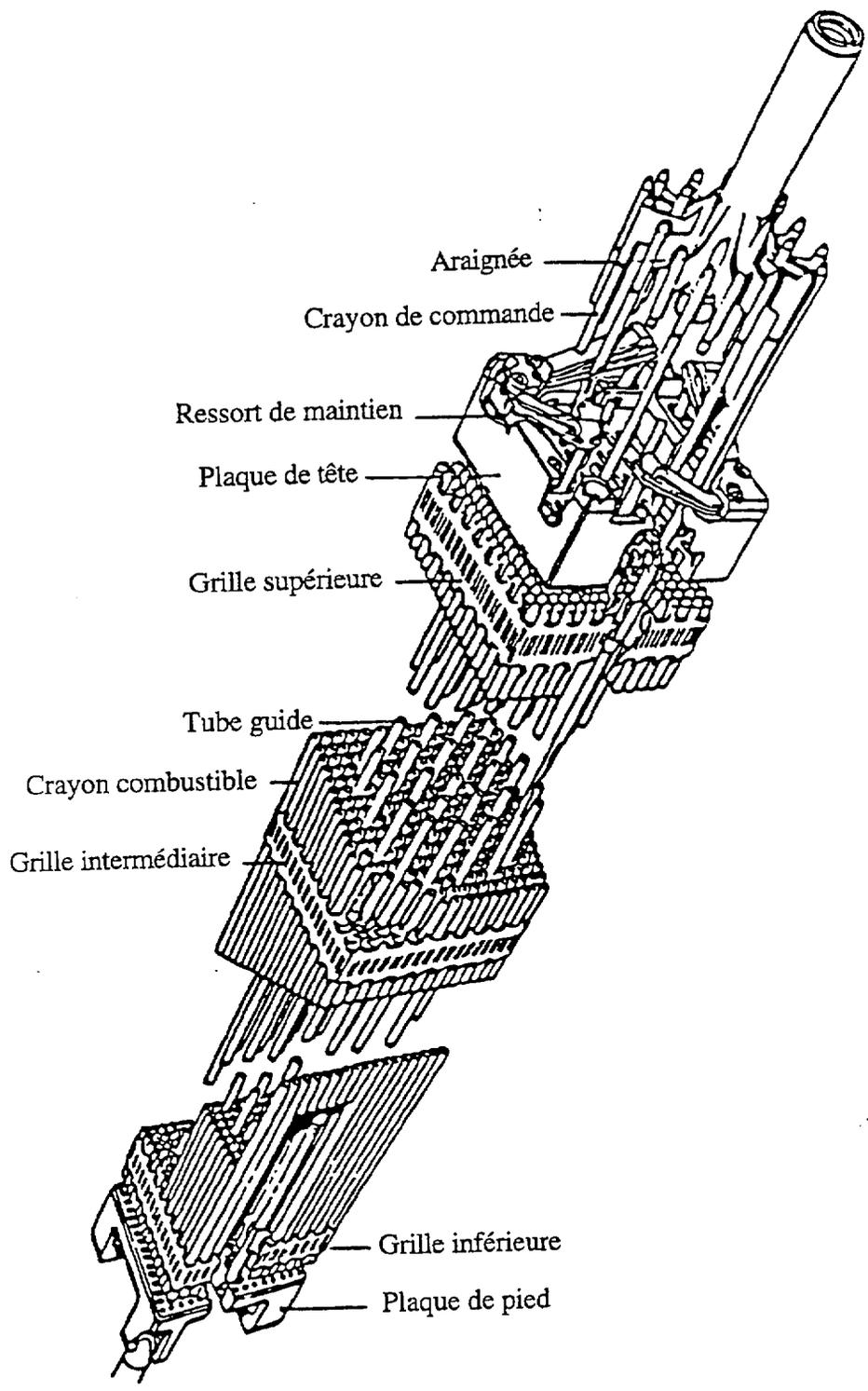


Figure 1 : Assemblage combustible

---

## CHAPITRE 1

---

### COMPORTEMENT DU COMBUSTIBLE UO<sub>2</sub> EN REACTEUR A EAU PRESSURISEE (R.E.P.)

Ce chapitre présente les caractéristiques principales du combustible du réacteur à eau pressurisée (R.E.P.) et les modes de fonctionnement de ce dernier, dont les transitoires de puissance qui nous intéressent particulièrement dans le cadre de cette thèse. On examine ensuite les conséquences de ces modes de fonctionnement sur le combustible.

#### I. LE COMBUSTIBLE DU REACTEUR A EAU PRESSURISEE (R.E.P.)

Dans un R.E.P., l'énergie thermique libérée par le coeur du réacteur est produite principalement par la fission nucléaire d'atomes lourds, principalement l'uranium 235, provoquée par l'impact de neutrons. Pour que la réaction s'entretienne, on utilise un combustible d'oxyde d'uranium enrichi en uranium 235 de 2,1% à 4,5%.

Le coeur du réacteur est constitué d'assemblages de crayons combustibles et de structures absorbantes, appelées grappes, destinées à contrôler la réaction en chaîne. Chaque assemblage est un réseau à pas carrés (17x17 emplacements) contenant 264 crayons combustibles et 25 tubes guides (Figure 1). A l'intérieur de 24 tubes guides pénètre la grappe de commande constituée des crayons absorbants neutroniques ; le tube central est réservé à une éventuelle instrumentation de l'assemblage.

Le combustible du coeur est renouvelé par tiers ou par quart tous les douze à dix huit mois (selon le type de gestion du réacteur), ce qui porte la durée de vie d'un crayon en réacteur de 3 à 4 ou 5 ans selon sa puissance de fonctionnement. La période entre deux arrêts successifs pour le besoin de chargement et de déchargement en combustible du réacteur est appelée un cycle. L'avancement du cycle d'irradiation est évalué par le taux de combustion (MWj/tU ou GWj/tU), qui correspond à l'énergie générée par une tonne de combustible.

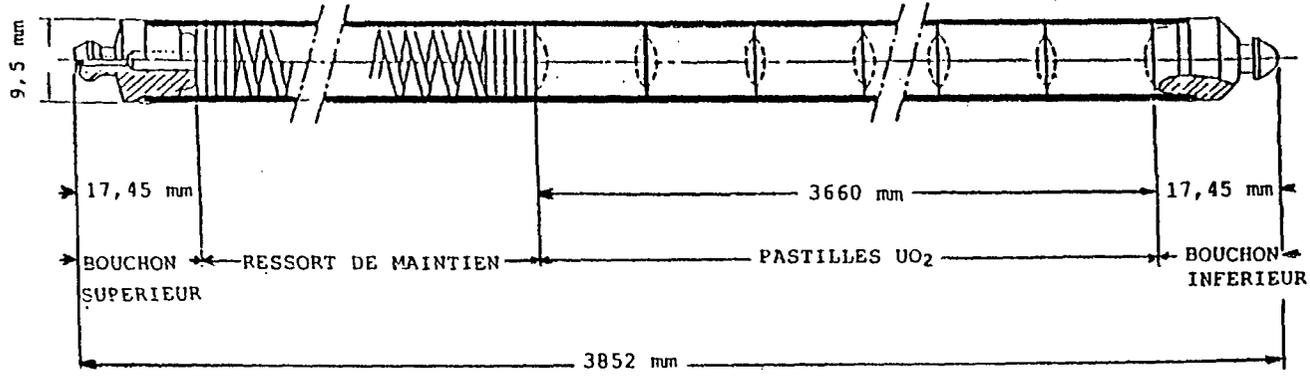


Figure 2 : Crayon combustible

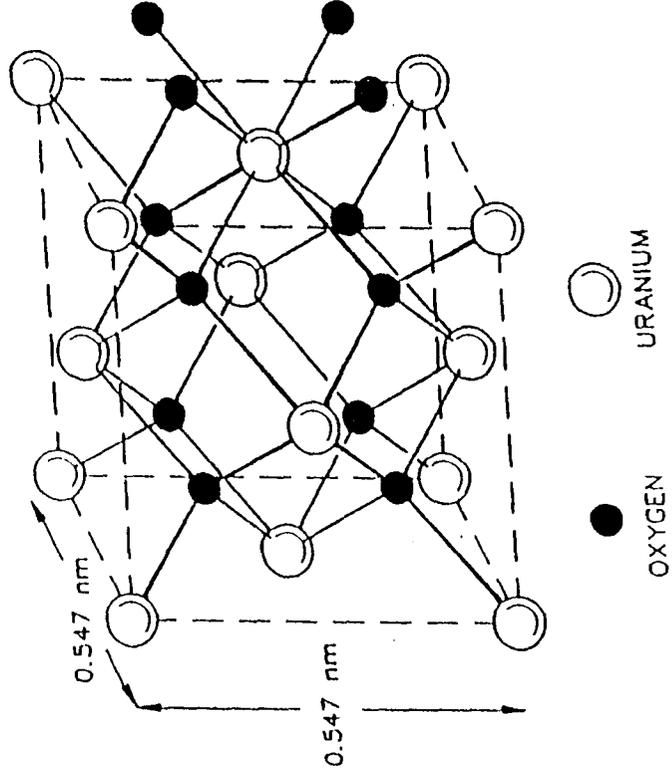


Figure 3 : Structure cristalline de l'UO<sub>2</sub> stoechiométrique

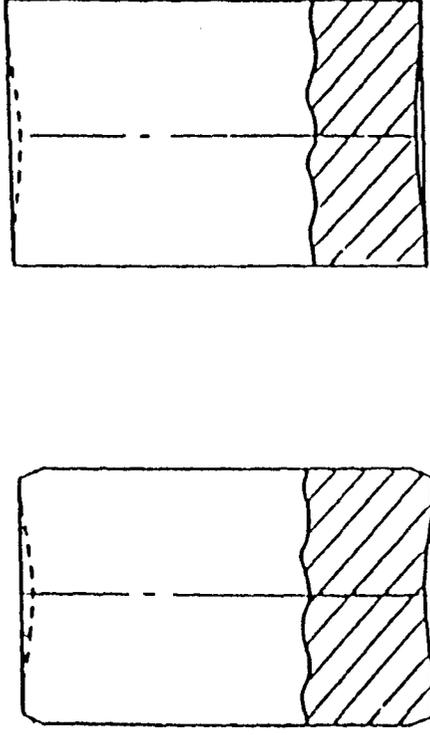


Figure 4 : Pastille de combustible

### I.1. LE CRAYON COMBUSTIBLE [1] [2]

Le crayon combustible se présente sous la forme de pastilles empilées dans une gaine tubulaire (Figure 2). Il est constitué de :

- un tube de gainage en Zircaloy-4, alliage à base de Zirconium dont les éléments d'alliage sont l'étain (1,2-1,7%), le fer (0,18-0,24%), le chrome (0,07-0,13%) et l'oxygène (0,1-0,15%) ; le diamètre externe est d'environ 9,5 mm, son épaisseur voisine de 0,6 mm ; sa longueur est de 4 m ;
- un empilement de pastilles de combustible  $UO_2$  d'une longueur d'environ 3,6 m ;
- une chambre d'expansion supérieure, pour limiter l'augmentation de pression liée à l'accumulation des gaz de fission relâchés et pour accommoder l'évolution axiale de la colonne combustible ;
- un ressort en Inconel garantissant le maintien de la colonne fissile, lorsque le crayon est neuf ;
- deux bouchons d'extrémité en Zircaloy-4 soudés assurant l'étanchéité de l'ensemble.

Avant fermeture, le crayon est pressurisé avec de l'hélium à 25 bars.

La gaine du crayon combustible joue un rôle important dans la sûreté du réacteur puisqu'elle constitue la première barrière entre les produits de fission radioactifs et l'environnement. Le maintien de son intégrité, en fonctionnement normal et lors d'un incident, doit être garanti.

### I.2. L'OXYDE D'URANIUM [1] [2]

Le dioxyde d'uranium  $UO_2$  est une céramique obtenue par frittage à haute température dont la masse volumique théorique est de  $10,96 \text{ g/cm}^3$ . Après fabrication, il a une porosité d'environ 5,5 %. Il cristallise dans une structure de type fluorine de paramètre cristallin  $a=5,47 \text{ \AA}$  (Figure 3). Après fabrication, sa composition est stoechiométrique et sa température de fusion est de  $2847 \text{ }^\circ\text{C}$ . Il réagit peu avec l'eau.

Il se présente sous la forme de pastilles d'un diamètre nominal de 8,2 mm et d'une hauteur de 13,5 mm (Figure 4). Elles ont un évidement hémisphérique à chaque extrémité. Cet évidement est destiné à compenser l'excès de dilatation du centre de la pastille par rapport à la périphérie en fonctionnement à chaud. Les pastilles sont généralement chanfreinées pour en faciliter l'introduction dans la gaine.

Le combustible est obtenu à partir d'une poudre d'oxyde comprimée puis frittée à  $1700^\circ\text{C}$  pendant 4 heures.

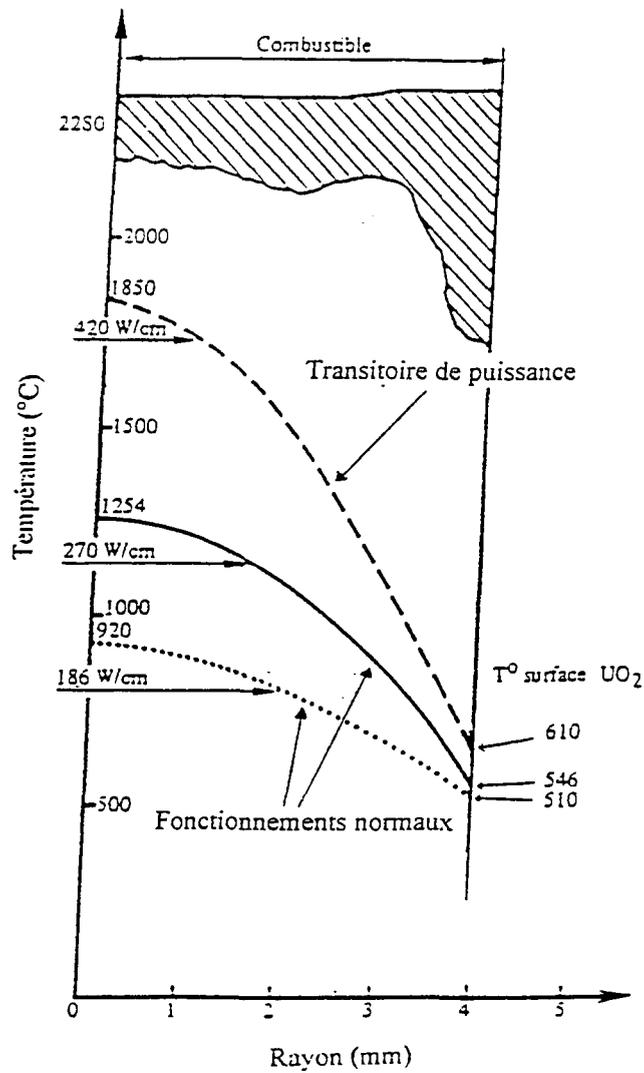


Figure 5 : Distribution radiale de la température dans une pastille combustible

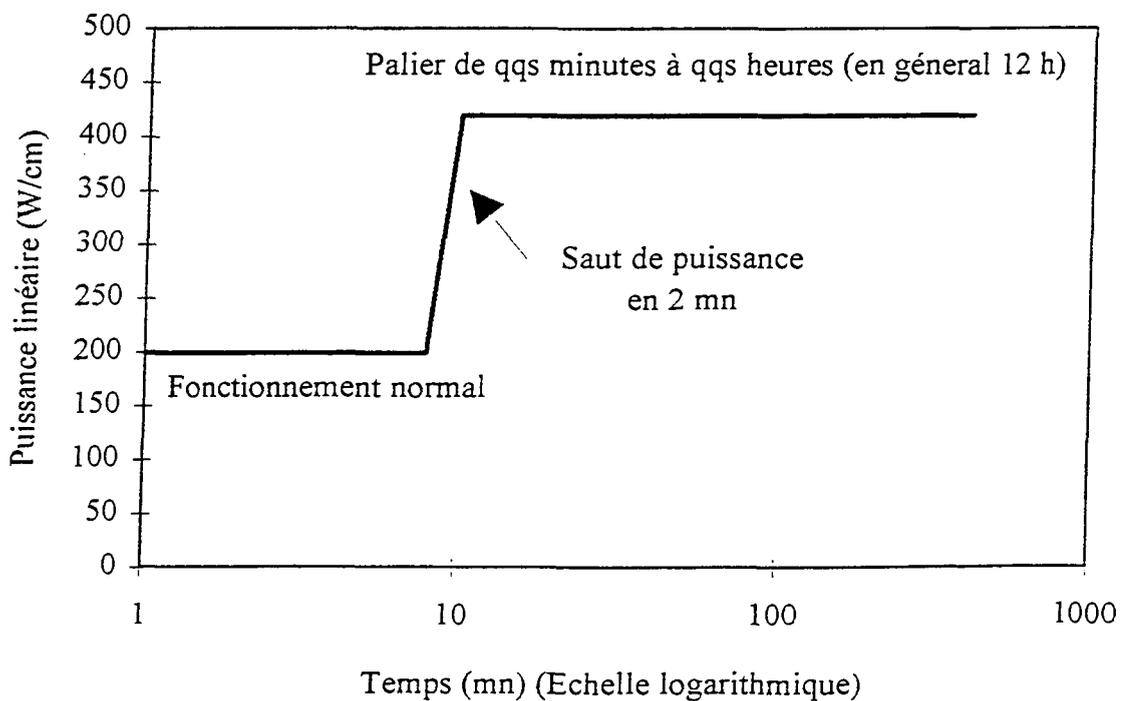


Figure 6 : Schéma d'un transitoire de puissance

## **II. LES MODES DE FONCTIONNEMENT DES R.E.P.**

### **II.1. CONDITIONS NORMALES DE FONCTIONNEMENT**

Outre le fonctionnement à puissance constante en palier, le fonctionnement normal [3] comprend des situations aussi diverses que les démarrages, les suivis de charge (chaque jour, on impose des variations de puissance de grande amplitude : 30 à 70% de la puissance nominale), les téléajustages (asservissement en temps réel du réacteur à la demande du réseau) et les arrêts. Les paramètres qui définissent l'état de la centrale (température du circuit de refroidissement, puissance nominale) varient. En conditions normales de fonctionnement, ils sont maintenus entre les limites qui ont été déterminées au moment de la conception de l'installation.

Lors du fonctionnement en palier, la pastille dégage une énergie de l'ordre de 200 W/cm de hauteur de combustible. Elle a, en son centre, une température voisine de 1000°C alors que sa périphérie est à une température de l'ordre de 500°C (Figure 5).

### **II.2. FONCTIONNEMENT LORS D'INCIDENTS OU D'ACCIDENTS, TRANSITOIRES DE PUISSANCE**

Lors d'un incident de fonctionnement, comme d'ailleurs localement en suivi de charge, il peut se produire un saut important de la puissance, appelé transitoire de puissance. Celui-ci se traduit par une augmentation importante de la température de la pastille (1850°C au centre de la pastille à une puissance de 420 W/cm) et de son gradient radial. L'écart de température entre le centre de la pastille et sa périphérie s'élève à 1200°C environ pour une puissance de 420 W/cm (Figure 5). Les transitoires de puissance les plus pénalisants pour le maintien de l'intégrité de la gaine, sont les transitoires rapides. Dans le but d'évaluer le seuil de rupture du crayon dans ces conditions, ils sont simulés dans le réacteur expérimental OSIRIS sur le site de Saclay, par exemple, par une augmentation de la puissance à une vitesse de 100 W/cm/mn jusqu'à une puissance maximale prédéterminée (environ 400 à 500 W/cm). Cette vitesse est jugée pénalisante vis à vis des conditions réelles lors d'incidents pouvant survenir en réacteur. Lorsque la puissance maximale est atteinte, cette dernière est maintenue à ce niveau pendant quelques minutes (cas de rupture de la gaine) ou quelques heures (en général 12 heures) avant retour du combustible à puissance nulle. Le schéma d'un transitoire de puissance, décrit ci-dessus, est donné sur la Figure 6.

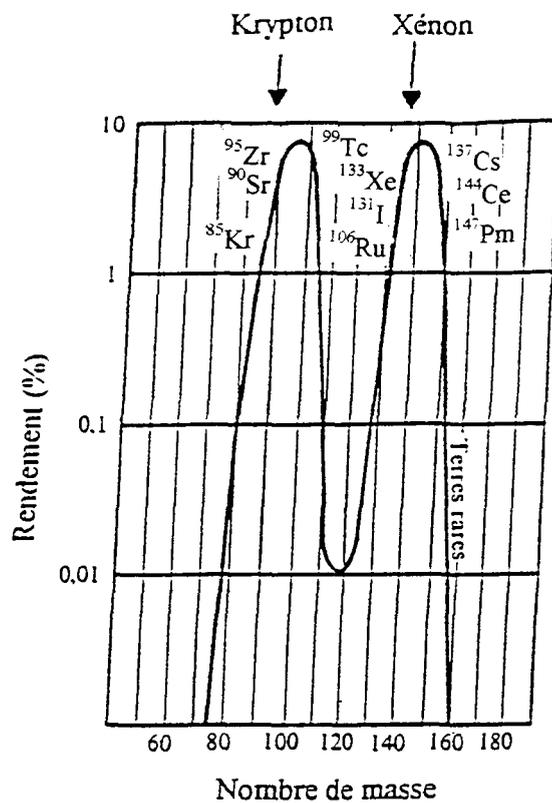


Figure 7 : Distribution des produits de fission

Type	Élément	%Massique
<b>GAZ RARES</b>	Xe	12,7
	Kr	1,1
<b>Inclusions métalliques</b>	Ru	6,9
	Pd	3,6
	Rh	1,2
	Tc	2,3
	Ag	0,3
	Cd	0,3
	Sn	0,2
	Mo	9,6
<b>Inclusions oxydes</b>	Ba	4,4
	Sr	2,6
	Zr	10,4
<b>En solution dans l'oxyde</b>	Y	1,4
	Ce	7,7
	Nd	11,1
	La	3,5
	Pr	3,2
	Pm	0,4
	Sm	2,0
	Eu	0,5
Gd	0,2	
<b>Produits volatils</b>	Cs	11
	Rb	1,0
	Te	1,4
	I	0,6

Tableau 1: Taux de création des principaux produits de fission en R.E.P. par la fission de l'uranium 235, à un taux de combustion de 45 GWj/tU et un enrichissement initial en  $^{235}\text{U}$  de 4,25%

### III. LES CONSEQUENCES DU FONCTIONNEMENT SUR LE COMBUSTIBLE

#### III.1. FORMATION DES PRODUITS DE FISSION

Chaque fission engendre 2 nouveaux atomes appelés produits de fission : 30% se trouvent sous forme gazeuse ou volatile (c'est à dire gazeux lorsque la température est supérieure à environ 1100°C) ; les 70% restants sont sous forme solide dans les gammes de températures atteintes. Ces atomes viennent se placer en insertion ou en substitution dans la matrice d'UO<sub>2</sub>. Une grande partie des produits de fission engendrés au moment de la fission sont des nucléides instables à période courte. Par désintégrations successives, ils donneront naissance à des produits de fission stables ou quasi stables (présentant des périodes supérieures à plusieurs années). La répartition des produits de fission créés lors de la fission de l'uranium 235 est donnée par la courbe de rendement de fission en fonction du nombre de masse de la Figure 7 [4].

Un exemple de taux de création des principaux produits de fission, donnés en % massique pour un taux de combustion de 45 GWj/tU et un enrichissement initial en <sup>235</sup>U de 4,25% pour un combustible UO<sub>2</sub>, est présenté dans le Tableau 1 [1, chap3]. Les produits de fission peuvent être classés en trois groupes : les produits de fission solides, les produits de fission volatils et les produits de fission gazeux.

##### *a) Produits de fission solides*

Ils comprennent essentiellement :

- les éléments métalliques : le Palladium, le Technétium, le Ruthénium, le Rhodium, et le Molybdène;
- les oxydes insolubles dans la matrice d'UO<sub>2</sub> (Baryum, Strontium, Zirconium)
- les oxydes dissous dans le réseau d'UO<sub>2</sub> (Yttrium) et les lanthanides (Lanthane, Cérium, Praséodyme, Néodyme, Prométhium, Samarium)

##### *b) Produits de fission volatils*

Les produits de fission volatils sont le Césium, l'Iode, le Tellure, le Rubidium.

##### *c) Produits de fission gazeux*

Les produits de fission à l'état gazeux sont les gaz rares : le Xénon, le Krypton.

### III.2. GONFLEMENT

La présence dans la matrice des produits de fission provoque une variation de volume macroscopique appelée gonflement.

En régime normal de fonctionnement (jusqu'à 2 à 3 ans d'irradiation), le gonflement résulte surtout de l'insertion ou de la substitution de deux atomes de fission à la place d'un atome d'uranium [5] [6]. Il est de 0,6 à 0,7% pour 10 GWj/tU [2].

Lors d'un transitoire de puissance, sous l'effet cumulé de l'élévation de la température et du gradient thermique, les produits de fission gazeux (Xénon et Krypton) dissous dans la matrice s'associent sous forme de bulles qui font gonfler le combustible. Ce gonflement appelé « gazeux » devient alors prépondérant par rapport au gonflement dû aux produits de fission solides ou aux atomes de gaz dissous dans la matrice.

### III.3. RELACHEMENT

En conditions normales de fonctionnement, le relâchement n'est pas nul, même s'il reste faible. Les gaz de fission sont éjectés sous l'effet des chocs, lors des réactions nucléaires, vers l'extérieur du combustible ou dans les fissures de ce dernier. On parle alors de relâchement athermique.

Lors d'un transitoire de puissance, le relâchement s'active thermiquement et devient important. Les bulles aux joints de grains forment des réseaux ouverts sur l'extérieur ou sur des fissures et les atomes qui arrivent par diffusion aux joints de grains peuvent s'évacuer.

La fraction des produits de fission volatils et des gaz relâchés par le combustible entre en contact avec la surface de la gaine en vis à vis du combustible. Certains de ces produits volatils sont chimiquement agressifs. Si la contrainte dans la gaine est suffisante, ils participent au phénomène de corrosion sous contrainte. Par ailleurs, à cause de la mauvaise conductibilité des gaz rares par rapport à l'hélium de remplissage ( $\lambda_{\text{He}} \cong 20 \lambda_{\text{Xe}}$ ), le relâchement gazeux provoque une dégradation du transfert thermique, d'où une élévation de la température du combustible, ce qui amplifie le gonflement et le relâchement des gaz de fission. En outre, les gaz de fission augmentent la pression interne dans le crayon. Si la gaine est déjà en traction par interaction avec la pastille, ce phénomène peut contribuer à augmenter sensiblement son niveau de contrainte.

Les mécanismes de gonflement et de relâchement gazeux seront détaillés dans le chapitre suivant.

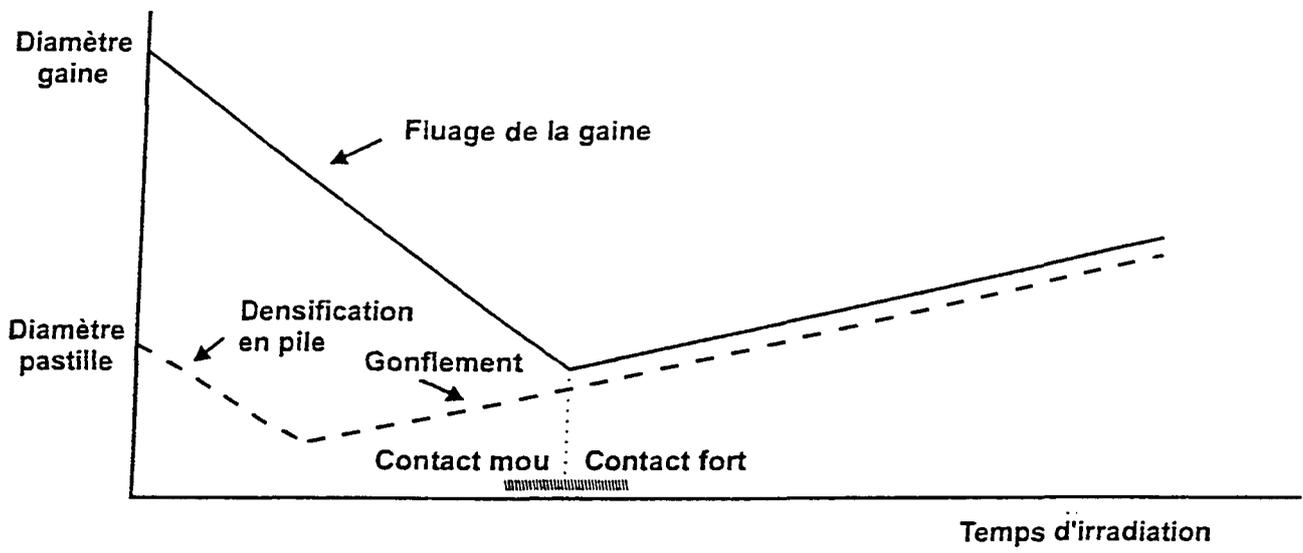


Figure 8 : Evolution géométrique de la pastille et de la gaine en fonctionnement normal

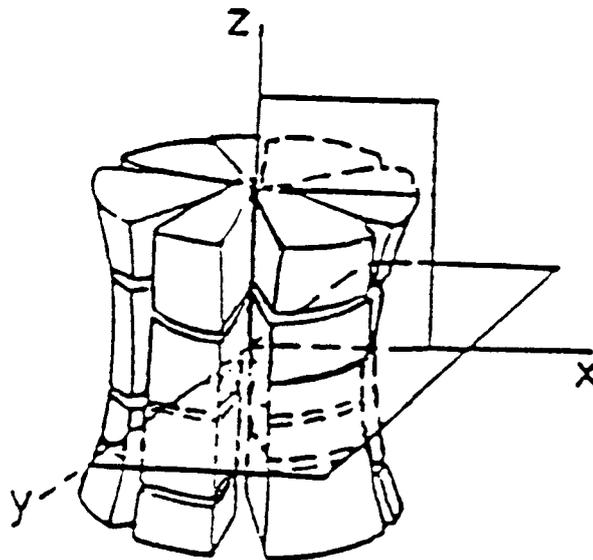


Figure 9 : Forme de diabolo

### **III.4. INTERACTION PASTILLE - GAINÉ (I.P.G.)**

Au début de la vie du crayon, lors d'un fonctionnement normal, le jeu de fabrication entre la pastille et la gaine (Figure 8) diminue progressivement sous l'effet cumulé de :

- la dilatation thermique différentielle entre le combustible et la gaine,
- le gonflement de l'UO<sub>2</sub> (après une première phase de densification),
- le fluage de la gaine en compression sous l'effet de la pression externe de l'eau

(155 bars) supérieure à la pression interne.

Un contact assez fort pour qu'on puisse parler d'interaction pastille-gaine (I.P.G.) s'établit dans le courant du deuxième cycle.

Lors d'un transitoire de puissance, sous l'effet de l'accroissement de la température centrale de la pastille, celle-ci prend la forme d'un diabololo (Figure 9) et sa dilatation différentielle est exacerbée. Il en résulte une contrainte de traction dans la gaine, particulièrement élevée dans les plans des interpastilles.

Le phénomène de corrosion sous contrainte a été identifié comme responsable des ruptures par I.P.G. [1]. La fragilisation de la gaine par les produits de fission agressifs, tels que l'Iode ou le Césium, peut conduire celle-ci à une rupture pour un niveau dépassant un seuil, qui peut être bien inférieur à la charge à la rupture.

Le niveau de contrainte de la gaine reste donc un élément crucial pour le maintien de son intégrité. Ainsi les phénomènes de gonflement et de relâchement gazeux, qui contribuent à augmenter la contrainte en régime transitoire et à forte puissance, méritent-ils d'être bien compris et modélisés.

---

## **CHAPITRE 2**

---

### **ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT**

## SOMMAIRE DU CHAPITRE 2

### ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT

I. BULLES DE GAZ DE FISSION .....	20
I.1. Définition .....	20
I.2. Equilibre de la bulle .....	22
I.2.1. Concentration en lacunes .....	22
I.2.2. Equation d'équilibre.....	22
a) Cas d'une bulle sphérique.....	22
b) Cas d'une bulle lenticulaire.....	23
II. PRINCIPAUX MECANISMES THEORIQUES DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION .....	23
II.1. Germination des bulles .....	24
II.1.1. Germination homogène.....	24
II.1.2. Germination hétérogène.....	24
II.2. Transport du gaz vers les joints de grains.....	24
II.2.1. Diffusion des atomes de gaz de fission .....	25
a) Mécanisme .....	25
b) Valeurs expérimentales .....	25
II.2.2. Migration des bulles dans le grain .....	25
a) Mécanismes de base .....	25
b) Migration au hasard .....	25
c) Migration orientée.....	26
II.3. Croissance des bulles par absorption d'atomes de gaz qui diffusent.....	27
II.4. Coalescence des bulles .....	28
II.5. Formation des tunnels .....	29
III. MODELES NUMERIQUES .....	29
III.1. Modèle de gonflement intragranulaire isotherme hors pile .....	29
III.2. Modèle de relâchement des gaz de fission isotherme hors pile.....	30
IV. SYNTHESE.....	32

---

## CHAPITRE 2

---

### ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT

Nous allons décrire, dans ce chapitre, les mécanismes de gonflement et de relâchement à haute température, proposés dans la littérature. Ces mécanismes seront utilisés ultérieurement, dans le chapitre 5, pour l'interprétation des résultats expérimentaux obtenus dans le cadre de la thèse. Nous décrirons ensuite un modèle numérique de gonflement et un modèle numérique de relâchement des gaz de fission, auxquels nous ferons appel, également dans le chapitre 5, pour l'interprétation des mesures de gonflement et de relâchement que nous avons effectuées.

Ces mécanismes sont fondés sur le comportement des bulles de gaz de fission. L'étude bibliographique débutera par quelques données théoriques relatives à ces bulles de gaz de fission.

#### I. BULLES DE GAZ DE FISSION

##### I.1. DEFINITION

Une bulle de gaz de fission est une cavité, formée par agglomération de lacunes du solide, contenant des atomes de gaz de fission [7, pb 16].

En règle générale, **les gaz nobles de fission (Xénon et Krypton) sont assimilés à des gaz parfaits** [8, p202]. La loi existant entre la pression  $P$  du gaz, son volume  $V$  et la température  $T$  est :

$$P V = nkT \quad (\text{II. 1})$$

où  $n$  est le nombre d'atomes du gaz et  $k$  la constante de Boltzmann.

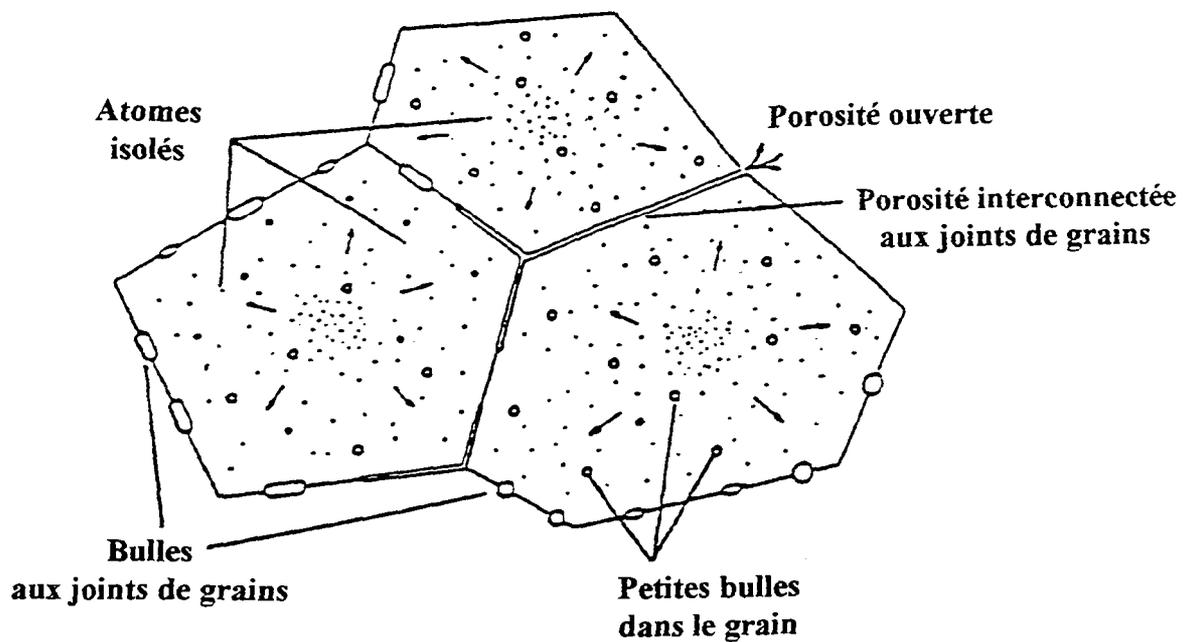


Figure 10 : Bulles de gaz de fission dans un combustible

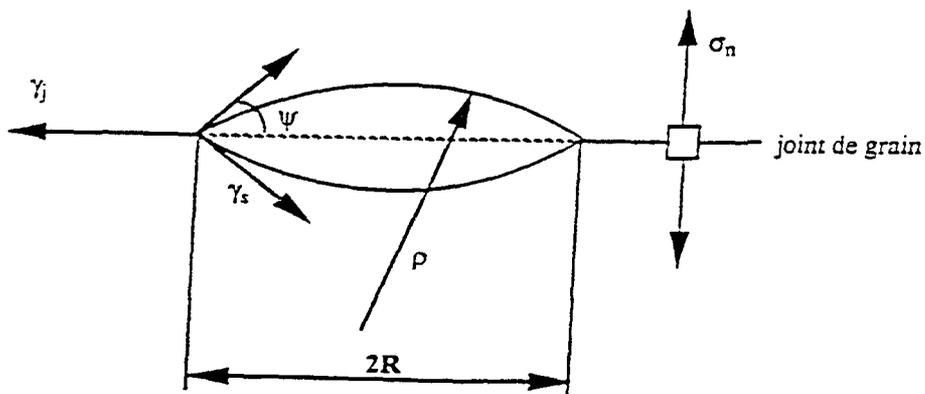


Figure 11 : Schéma d'une bulle lenticulaire sur un joint de grains d'énergie  $\gamma_j$  alors que l'énergie de surface vaut  $\gamma_s$

Pour les petites bulles de taille inférieure à 10 Å dans lesquelles la pression est élevée, le comportement des gaz de fission s'écarte de la loi des gaz parfaits. Dans ces conditions, le gaz est supposé se comporter comme un gaz de Van der Waals.

On distingue deux catégories de bulles de gaz de fission (Figure 10) [8, p265]:

- les bulles dans le grain, appelées intragranulaires, de forme sphérique ;
- les bulles aux joints de grains, dites intergranulaires, de forme lenticulaire.

**Une bulle située dans un joint de grains** (Figure 11) n'est pas sphérique à l'équilibre, mais **lenticulaire**, car à l'endroit où la bulle rencontre le joint de grains, les tensions superficielles s'équilibrent [9, p239] :

$$\gamma_j = 2 \cdot \gamma_s \cdot \cos \psi$$

où  $\gamma_s$  est la tension superficielle de l' $\text{UO}_2$ ,  $\gamma_j$  est celle du joint de grains et  $\psi$  est l'angle de raccordement des deux moitiés de la cavité.

La surface d'une bulle lenticulaire,  $S$ , est égale à  $F_s \cdot \rho^2$  (II. 2). Celle du joint occupée par la bulle,  $S_j$ , est égale à  $F_j \cdot \rho^2$  (II. 3) et le volume de la bulle,  $V$ , est égal à  $F_v \cdot \rho^3$  (II. 4) où  $\rho$  est le rayon de courbure de la cavité.

Les coefficients  $F_s$ ,  $F_j$  et  $F_v$  sont définis par :

$$F_s = 4\pi(1 - \cos \Psi) \text{ (II. 4)} ; F_j = \pi \sin^2 \Psi \text{ (II. 5)} ; F_v = \frac{2\pi}{3}(1 - \cos \Psi)^2 (2 + \cos \Psi) \text{ (II. 6)}$$

où  $\Psi$  est l'angle de raccordement des deux moitiés de la cavité. **Cet angle vaut dans l' $\text{UO}_2$  environ 56° [10].**

Les valeurs expérimentales de l'énergie de surface  $\gamma_s$  à haute température sont très dispersées.  $\gamma_s$  décroît avec la température. H.J. Matzke et al. [11] proposent de retenir les mesures effectuées par P. Nikolopoulos et al. [12] qui, en supposant une corrélation linéaire entre  $\gamma_s$  et  $T$ , admettent :

$$\gamma_s = 1,507 - 0,3457 \cdot 10^{-3} T \quad (\text{J/m}^2) \text{ de } 0\text{K} < T < 3073 \text{ K}$$

Dans la gamme de températures que nous avons choisies, cela correspond à une évolution de 1,05 J/m<sup>2</sup> à 1250K à 0,8 J/m<sup>2</sup> à 2000K. Cette variation de l'énergie de surface est donc faible et équivalente à l'erreur relative, estimée à 20%. **Nous considérerons donc la tension superficielle  $\gamma_s$  constante dans notre étude et égale à 0,9J/m<sup>2</sup>.**

## I.2. EQUILIBRE DE LA BULLE

Lorsqu'un atome de gaz de fission arrive dans la bulle, celle-ci pour se remettre à l'équilibre, doit augmenter sa taille. Ceci se fait par absorption de lacunes. L'équilibre de la bulle est donc étroitement lié à la concentration en lacunes et à leur mobilité.

### I.2.1. Concentration en lacunes

A sa sortie du réacteur, suite aux cascades de déplacements des atomes provoqués par le flux de neutrons, le combustible  $UO_2$  est sursaturé en lacunes. Lors des traitements thermiques, la concentration en lacunes tend quasiment instantanément vers une concentration d'équilibre thermodynamique.

A haute température, lorsqu'un atome de gaz arrive dans une bulle intergranulaire, la concentration en lacunes est suffisamment importante dans le joint de grains pour permettre le retour à l'état d'équilibre [13].

Par contre dans le grain, les auteurs ne sont pas en accord. Certains considèrent des bulles à l'équilibre [14][24], alors que d'autres les supposent en surpression [15][16].

### I.2.2. Equation d'équilibre

#### a) Cas d'une bulle sphérique

Soit une bulle sphérique de rayon  $R$  contenant  $n$  atomes de gaz de fission. On identifie son énergie libre à la somme de l'énergie libre du gaz de fission et de l'énergie de surface de la bulle. En supposant  $T$  et  $n$  fixés, l'équilibre correspond à :

$$\gamma_s \cdot dS - P \, dV = 0 \quad (\text{II. 7})$$

où  $P$  est la pression du gaz de fission ;  $\gamma_s$  est la tension superficielle de l' $UO_2$  ;  $S$  est la surface de la bulle et  $V$  son volume.

L'équation (II. 7) s'écrit :

$$8\pi\gamma_s R \cdot dR - P \, 4\pi R^2 \cdot dR = 0$$

On montre donc qu'à l'équilibre, le rayon de la bulle  $R$  et la pression du gaz  $P$  sont liés par [8, p203]:

$$P = \frac{2\gamma_s}{R} \quad (\text{II. 8})$$

**b) Cas d'une bulle lenticulaire**

L'énergie libre d'une bulle lenticulaire de rayon de courbure  $\rho$  située sur un joint de grains (Figure 11) est diminuée de l'énergie de la surface du joint de grains occupée par la bulle. L'équation d'équilibre (II. 7) s'écrit alors :

$$\gamma_s.dS - \gamma_j.dS_j - P dV = 0$$

où  $\gamma_j$  est la tension superficielle du joint de grains,  $S_j$  la surface du joint de grains occupée par la bulle.

$S$  et  $S_j$  sont données par les expressions (II. 2), (II. 3). L'équation devient :

$$4 \gamma_s.(F_s / 2 - F_j \cos \psi) \rho.d\rho - 3 P F_v . \rho^2 d\rho = 0$$

d'où

$$P = \frac{4\gamma_s(F_s / 2 - F_j \cos \psi)}{3 F_v \rho}$$

où  $\Psi$  est l'angle de raccordement des deux moitiés de la bulle.

En remplaçant respectivement  $F_s$ ,  $F_j$  et  $F_v$  par les équations (II. 4), (II. 5) et (II. 6), on montre qu'à l'équilibre, **le rayon de courbure de la bulle lenticulaire et la pression du gaz sont liés par [9]:**

$$P = \frac{2\gamma_s}{\rho} \quad (\text{II. 9})$$

On retrouve l'équation précédente (II.8) obtenue pour une bulle sphérique où le rayon  $R$  de la bulle sphérique est remplacé par le rayon de courbure  $\rho$  de la bulle lenticulaire.

Par exemple, pour une bulle de rayon de courbure  $1 \mu\text{m}$  et une énergie de surface  $\gamma_s$  de  $0,9 \text{ J/m}^2$ , la pression  $P$  est égale à 18 bars.

## II. PRINCIPAUX MECANISMES THEORIQUES DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION

On donne ci-dessous les mécanismes théoriques du gonflement et du relâchement, à hautes températures, hors pile, auxquels on fera appel pour l'interprétation des courbes expérimentales montrant, pour différentes températures de traitements thermiques, le gonflement et le relâchement des gaz de fission en fonction du temps. Sous l'effet de la température, les gaz de fission, principalement dissous dans la matrice [5][6] s'associent et forment de petites bulles dans le grain et aux joints de grains : c'est le phénomène de germination des bulles. En outre, les gaz de fission migrent vers les joints de grains, soit

sous forme d'atomes, soit sous forme de bulles. Par ailleurs, les bulles vont grossir, soit par absorption d'atomes de gaz qui diffusent, soit par coalescence. Enfin, les bulles de gaz intergranulaires forment progressivement des tunnels qui créent des chemins vers l'extérieur (formation des tunnels).

## **II.1. GERMINATION DES BULLES**

### **II.1.1. Germination homogène**

La germination des bulles, au sein d'un matériau, dans lequel le gaz se trouve à l'état de sursaturation, obéit aux lois générales de la germination des phases métallurgiques. Des atomes de gaz de fission, dont la migration est thermiquement activée, se rassemblent, formant, de ce fait, un amas de  $n$  atomes. Si ce nombre d'atomes  $n$  de gaz de fission reste inférieur à un nombre d'atomes critique  $n^*$ , cet amas tend à disparaître. Dans le cas contraire, il tend à croître et l'on parle alors de « bulle » [7][9]. En raison de la très faible solubilité thermodynamique du Xénon et du Krypton dans l' $UO_2$ , un amas stable correspond à la rencontre de 2 à 4 atomes [8, p222][18].

Le nombre de bulles qui ont germé après un temps donné dépend d'une part de l'énergie d'interface mais aussi de la température [17] [18]. Plus la température est élevée, plus le nombre de bulles créées est important.

### **II.1.2. Germination hétérogène**

On peut diminuer la hauteur de l'énergie à franchir,  $\Delta G^*$  correspondant au nombre critique  $n^*$  d'atomes de gaz de fission, en abaissant l'énergie de surface  $\gamma_s$ . Ceci est le cas, par exemple, sur des sites préférentiels comme les joints de grains, les dislocations, les précipités de produits de fission métalliques, les trajectoires de fragments de fission.

Ainsi, sur les joints de grains, la germination est plus aisée parce que ceux-ci ont une énergie  $\gamma_j$  qui disparaît lors de la formation de la bulle, ce qui diminue la barrière d'énergie  $\Delta G^*$  pour la germination des bulles intergranulaires [9].

## **II.2. TRANSPORT DU GAZ VERS LES JOINTS DE GRAINS**

Le transport du gaz vers les joints de grains s'effectue soit sous forme atomique soit sous forme de bulles. Mais de nombreux auteurs [19][20][21][22] ont montré que lors de traitements thermiques, dans un combustible traité en dessous de  $1550^\circ\text{C}$ , le mécanisme prédominant dans le transport du gaz vers les joints de grains est la diffusion des atomes de gaz dissous plutôt que le mouvement des bulles intragranulaires.

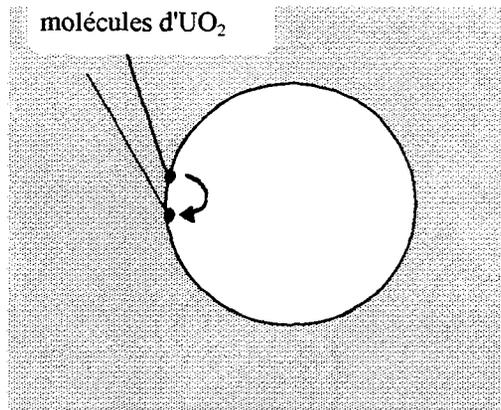


Figure 12 : Mécanisme de migration des bulles par diffusion à la surface

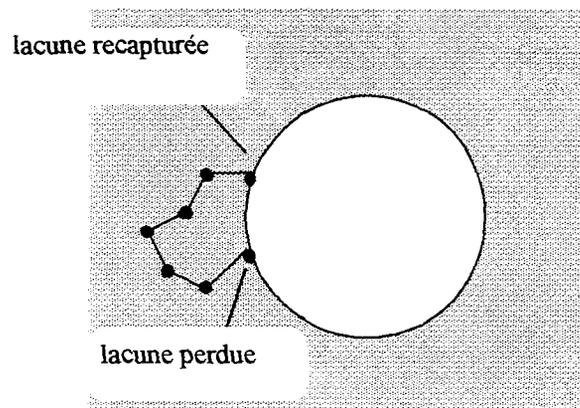


Figure 13 : Mécanisme de migration des bulles par diffusion en volume

Dans cette partie, nous présentons les mécanismes de diffusion des atomes de gaz de fission et la migration des bulles pour des températures supérieures à 1550°C.

### **II.2.1. Diffusion des atomes de gaz de fission**

#### ***a) Mécanisme***

Le mécanisme de diffusion des atomes de gaz de fission dans l'UO<sub>2</sub> n'est ni un mécanisme interstitiel simple, ni un mécanisme substitutionnel simple. Le gaz diffuse par des défauts de Schottky, c'est à dire par l'association de trois lacunes consistant en une lacune d'uranium et de deux lacunes d'oxygène.

#### ***b) Valeurs expérimentales***

Dans une matrice contenant des pièges, la diffusion des gaz de fission est ralentie par ces défauts (bulles dislocations). L'énergie d'activation est alors plus élevée. Hj. Matzke [23] propose une énergie d'activation de 4,7 eV comparée à une énergie de 3,9 eV dans une matrice non perturbée.

### **II.2.2. Migration des bulles dans le grain**

La migration des bulles a lieu à partir d'une température seuil estimée entre  $(0,5-0,6) \times T_{\text{fusion}}$  de l'UO<sub>2</sub> (soit entre 1400°C et 1700°C), par C. Ronchi et Hj. Matzke [33], confirmant les observations de plusieurs auteurs [5][19].

#### ***a) Mécanismes de base***

Au dessous de 1700°C, deux mécanismes sont envisagés :

- un mécanisme de migration des bulles par « diffusion à la surface » : la migration de la bulle est liée au mouvement concerté des atomes d'uranium et d'oxygène de la matrice le long de la surface de la bulle (Figure 12).

- un mécanisme de migration des bulles par « diffusion en volume » : les lacunes présentes dans le solide entrent dans la bulle. La bulle renvoie des lacunes vers la matrice (Figure 13). A l'équilibre, les vitesses d'absorption et d'émission sont identiques.

#### ***b) Migration au hasard***

En l'absence de forces motrices, la bulle se déplace au hasard. Dans ces conditions, D. Olander, [8, p236] montre que le coefficient de migration de la bulle, par diffusion des atomes d'uranium ou d'oxygène le long de sa surface, est inversement proportionnel au rayon à la puissance 4 de la bulle. Dans le cas de migration par échanges de lacunes avec la

matrice, le même auteur [8, p241] montre que le coefficient de diffusion est inversement proportionnel au cube du rayon de la bulle.

Dans les deux cas, les coefficients de diffusions sont donc inversement proportionnels au rayon de la bulle à une puissance (3 ou 4). Dans le chapitre 5, on considérera une migration au hasard des bulles dans les joints de grains. Le coefficient de diffusion,  $D_b$ , sera posé inversement proportionnel au rayon de la bulle à une certaine puissance. Cependant, cette puissance sera un paramètre expérimental.

Plusieurs études [19][22][ 25] ont été effectuées, pour déterminer le mécanisme de migration de la bulle, lors d'un traitement thermique. Dans tous les cas, les auteurs ont utilisé la microscopie électronique à transmission pour examiner sur lames minces du combustible contenant des bulles de Xénon et de Krypton. Ils ont mesuré la distance parcourue par les bulles lors d'un traitement thermique. Ils en ont déduit les coefficients de diffusion des bulles en fonction de leur rayon.

Les résultats entre eux sont très différents. Seules les mesures de M.E. Gulden [19] sont en accord avec la théorie de migration par diffusion en volume : d'après ces résultats, elle propose une énergie d'activation de 5,6 eV pour la migration des bulles, valeur qui correspond à l'énergie d'activation de l'autodiffusion en volume de l'uranium (qui est l'espèce qui diffuse le plus lentement[28]).

Par contre, les autres expériences [22][ 25] révèlent une augmentation du coefficient de diffusion des bulles avec leur rayon. Cela est en désaccord avec la théorie qui prévoit l'effet inverse. Plusieurs interprétations ont été proposées. Notamment a été suggéré l'effet des précipités qui ralentirait d'autant plus leur évolution que la bulle est petite,.... En fait, aucune explication n'est véritablement satisfaisante.

### c) *Migration orientée*

Une étude récente [16][26][27] propose un mouvement orienté des bulles dans un gradient de lacunes, créé entre le joint de grains et les bulles de gaz en surpression. Cette analyse suggère que les bulles remontent le gradient de lacunes. Plus elles se rapprochent du joint de grains, plus elle disposent de lacunes et plus elles évoluent vite bien qu'elles grossissent. Cela donne une explication des résultats précédents. La différence avec les résultats de M.E. Gulden [19] viendrait d'une concentration en atomes de gaz plus faible.

### II.3. CROISSANCE DES BULLES PAR ABSORPTION D'ATOMES DE GAZ QUI DIFFUSENT

Après le passage de l'étape de germination, lorsqu'un atome de gaz de fission arrive dans la bulle, celle-ci, pour se remettre à l'équilibre, doit augmenter sa taille [8, p201]. Ceci se fait par absorption de lacunes. Le retour à l'équilibre peut s'effectuer instantanément. Dans ce cas, le mécanisme qui gouverne la croissance est la migration des atomes de gaz. Cela suppose que la concentration en lacunes est suffisante et que la vitesse de diffusion des lacunes est plus rapide que celle des atomes de gaz. Si l'une de ces deux conditions n'est pas vérifiée, la croissance des bulles est alors contrôlée par la diffusion des lacunes.

En fait, on montre que, dans le joint de grains, c'est la diffusion des gaz de fission qui impose la cinétique de croissance. Tout d'abord, à température élevée, la source en lacunes des joints de grains alimentera suffisamment les bulles. Il reste ensuite à comparer les temps mis par une lacune et par un atome de gaz de fission pour atteindre la bulle. Le rapport des temps  $t_l$  et  $t_{Xe}$  mis par la lacune et par la bulle pour atteindre la bulle est inversement proportionnel au coefficient de diffusion de l'atome et de la lacune :

$$\frac{t_l}{t_{Xe}} = \frac{D_{Xe}}{D_l}$$

L'arrivée d'une lacune dans une bulle correspond au départ d'un atome d'uranium ou d'oxygène de sa surface. Le coefficient de diffusion d'une lacune de l' $UO_2$  sera pris égal au coefficient de diffusion de l'uranium qui est l'espèce qui diffuse le plus lentement :

$$D_{UO_2}^{Ul} = 1,38 \cdot 10^{-2} \exp(-2,5 \text{ eV} / kT) \text{ (cm}^2/\text{s)}$$

ce qui donne à  $T = 1673 \text{ K}$ ,  $D_{UO_2}^{Ul} = 5 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$

L'atome de Xénon provient d'une zone dans le grain située à proximité du joint. Son coefficient de diffusion est donné par Hj. Matzke [28] :

$$D_{Xe} = 0,5 \exp(-3,9 \text{ eV} / kT) \text{ (cm}^2 / \text{s)}$$

d'où, pour  $T = 1673 \text{ K}$ ,  $D_{Xe} = 9 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$

Dans ces conditions  $\frac{t_l}{t_{Xe}} \approx 10^{-3}$  d'où  $t_l \ll t_{Xe}$

**Lorsqu'un atome arrive dans une bulle intergranulaire, celle-ci, pour se remettre à l'équilibre, absorbe donc quasiment instantanément des lacunes.**

Par contre, dans le grain alimenté en lacunes provenant du joint de grains, c'est la diffusion des lacunes qui contrôle le mécanisme de croissance des bulles. On a vu dans la partie I.2.1 que la concentration en lacunes n'est peut-être pas suffisante pour permettre leur retour à l'équilibre. De plus, un calcul équivalent, en prenant pour la diffusion des lacunes, le coefficient d'autodiffusion de l'uranium dans la matrice proposé dans la partie II.2.2.b, on obtient  $t_l/t_{Xe}=100$ . Une lacune mettra plus de temps qu'un atome de Xénon pour atteindre la bulle.

#### II.4. COALESCENCE DES BULLES

La coalescence des bulles correspond à la fusion de deux bulles en une seule [8,p201]. Ce phénomène a lieu, soit lorsque les bulles migrent sous l'action de la température et que deux bulles sur la même trajectoire se rencontrent, soit lorsque deux bulles voisines immobiles grossissent jusqu'à ce qu'elles finissent par fusionner.

Il est difficile, à ce stade, de conclure quant à l'existence de la mobilité des bulles intergranulaires (on verra au chapitre 5 que c'est le cas). Par contre, comme on l'a vu précédemment, les bulles intragranulaires commencent à migrer à partir d'une température d'environ 1550°C.

Le phénomène de coalescence s'accompagne d'une brusque augmentation du volume : le volume final est supérieur à la somme des volumes des deux bulles initiales. Ceci peut se démontrer comme suit :

On considère une bulle sphérique ou lenticulaire dont le volume est  $F_v \rho^3$  et la surface  $F_s \rho^2$ . Dans le cas d'une bulle sphérique,  $\rho$  est le rayon de la bulle  $R$  et  $F_v = 4\pi/3$  et  $F_s = 4\pi$ . Dans le cas d'une bulle lenticulaire,  $\rho$  est le rayon de courbure,  $F_s$  et  $F_v$  sont donnés par les expressions (II. 4) et (II. 5). Le nombre d'atomes  $n$  par bulle est obtenu, en insérant l'équation d'équilibre d'une bulle donnée par l'expression (II. 8) ou (II. 9) dans la loi des gaz parfaits (II. 1) :

$$n = \frac{2\gamma}{kT} F_v \rho^2 \quad (\text{II. 10})$$

d'où

$$n = \frac{2\gamma}{kT} (F_v)^{1/3} V^{2/3} = \frac{2\gamma}{kT} \frac{F_v}{F_s} S \quad (\text{II. 11})$$

L'équation de conservation du nombre d'atomes,  $n_1$ ,  $n_2$  avant et  $n_3$  après la fusion de deux bulles s'écrit :

$$n_3 = n_1 + n_2$$

D'où en remplaçant par l'expression (II. 15), on obtient :

$$S_3 = S_1 + S_2 \quad \text{et} \quad V_3 = (V_1^{2/3} + V_2^{2/3})^{3/2}$$

Lorsque les deux bulles fusionnent, le retour à l'équilibre nécessite un apport de lacunes tel que les surfaces des bulles se conservent. Cela entraîne un volume final supérieur à la somme des deux volumes initiaux. Pour deux bulles égales de volume  $V$  se rencontrant, l'augmentation de volume est égale à  $0,83 V$  soit un gonflement de 41 % par rapport aux volumes initiaux [8, p217].

## II.5. FORMATION DES TUNNELS

Quand la densité de bulles intergranulaires est suffisante, les bulles s'interconnectent et forment des réseaux. S'ils accèdent à une surface libre ou une fissure, les gaz de fission piégés aux joints de grains peuvent alors être relâchés [8, p318].

## III. MODELES NUMERIQUES

### III.1. MODELE DE GONFLEMENT INTRAGRANULAIRE ISOTHERME HORS PILE

Seuls des modèles portant sur le gonflement dû aux bulles intragranulaires ont été développés dans la littérature [8, p213][24]. Nous exposons ci-dessous le modèle de croissance par coalescence des bulles intragranulaires, car il fournira une base de départ, pour le choix des hypothèses du modèle de gonflement intergranulaire, que nous bâtirons au chapitre 5. Ce modèle a été développé par G.W. Greenwood et M.V. Speight [24].

Les atomes de gaz de fission dans la matrice  $M$  ont été créés par une irradiation préalable à basse température dans un réacteur nucléaire. Sous irradiation, les atomes de gaz de fission ont précipité pour former  $N_0$  germes/cm<sup>3</sup> de rayon  $r_0$ .

Lors du traitement thermique, on suppose que les bulles deviennent mobiles. Elles migrent au hasard par un mécanisme de diffusion à la surface des bulles. Lorsque que deux bulles se rencontrent, elles fusionnent et, pour rétablir son équilibre, la nouvelle bulle absorbe des lacunes dont le nombre dépend de la taille de la bulle. Donc au cours du temps, le nombre de bulles diminue et la taille des bulles augmente. La bulle est supposée sphérique de rayon  $r$ , à l'équilibre et le gaz est considéré parfait.

L'hypothèse de coalescence des bulles implique que le nombre d'atomes de gaz de fission  $M$  dans la matrice se conserve et que la variation du nombre de bulles dans la matrice

est égal au taux de coalescence des bulles. Le taux de coalescence est égal à  $16\pi r D_b N^2$ .  
D'où,

$$\frac{dN}{dt} = - 16\pi r D_b N^2$$

Après calcul, intégration et en supposant que  $N \ll N_0$ , la loi de croissance par coalescence de la bulle est donnée par :

$$r = \left( \frac{45}{2\pi} \right)^{1/5} \left( \frac{\Omega^{4/3} D_s M k T}{\gamma} \right)^{1/5} t^{1/5}$$

Le gonflement est donc donné par la formule :

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{4\pi r^3}{3} N = \frac{M k T}{2\gamma} r$$

d'où,

$$\frac{G}{T} = K \left( t \cdot T \cdot \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \right)^{1/5} \quad (\text{II. 12}) \quad \text{où } K = \frac{M k}{2\gamma} \left( \frac{45}{2\pi} \right)^{1/4} \left( \frac{\Omega^{4/3} M k}{\gamma} \right)^{1/5} \quad (\text{II. 13})$$

avec

G : gonflement

T : température

M : nombre total d'atomes

D<sub>s</sub>: coefficient de diffusion en surface

r : rayon de la bulle

Ω : volume atomique

γ : tension surfacique

k : constante de Boltzmann

R: constante des gaz parfaits

### III.2. MODELE DE RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION ISOTHERME HORS PILE

Le modèle exposé ci-dessous, développé par K.E. Zimen [29], a été repris par A.H. Booth [30]. A.H. Booth a appliqué la théorie de la diffusion classique au mécanisme de relâchement des gaz de fission dans une sphère de combustible de rayon a. Comme nous le verrons par la suite, ce modèle sera utilisé pour l'interprétation du relâchement des gaz de fission au chapitre 5.

Les atomes de gaz de fission dans la matrice ont à nouveau été créés par une irradiation préalable à basse température dans un réacteur nucléaire. A l'instant initial avant le traitement thermique, la concentration en gaz est égale à  $c_0$ . Sous l'effet de la température, les atomes deviennent mobiles. La décroissance radioactive, lors du traitement, est négligée.

La sphère est considérée comme un milieu homogène, sans défauts (bulles, pores de fabrication, dislocations, joints de grains...). Les effets de ces pièges seront pris en compte

dans le coefficient de diffusion apparent D.

L'équation de diffusion est donnée par :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial c}{\partial r} \right)$$

où c est la concentration en gaz de fission, D est le coefficient de diffusion apparent des gaz de fission dans la sphère.

Les conditions initiales et aux limites sont :

$$C(r,0) = C_0$$

$$C(0,t) = \text{finie}$$

$$C(a,t) = 0$$

Le flux d'atomes qui sort de la sphère est :

$$J = -D \left( \frac{\partial c}{\partial r} \right)_a$$

La fraction de gaz relâché qui sort de la sphère après un traitement thermique d'une durée t est donnée par :

$$f = \frac{4\pi a^2 \int_0^t J \cdot d\tau}{4\pi a^3 c_0 / 3} = \frac{3}{a c_0} \int_0^t J \cdot d\tau$$

Le calcul est développé en Annexe 1. Finalement, en considérant l'approximation des temps courts ( $Dt/a^2 \ll 1$ ), le relâchement f est donné par :

$$f (\%) = \left( \frac{6}{\sqrt{\pi}} \cdot \left( \frac{Dt}{a^2} \right)^{1/2} - 3 \cdot \left( \frac{Dt}{a^2} \right) \right) \times 100 \quad \text{où t est le temps ( s )}$$

On définit D' le coefficient de diffusion empirique tel que  $D' = D/a^2$ . L'équation devient :

$$f (\%) = \left( \frac{6}{\sqrt{\pi}} \cdot (D' t)^{1/2} - 3 \cdot (D' t) \right) \times 100 \quad (\text{II. 14})$$

Cette équation peut s'appliquer à des formes d'échantillons autres que des sphères. Dans ce cas, a est défini par le rapport ci-dessous :

$$\frac{3}{a} = \frac{S}{V}$$

où S est la surface libre de l'échantillon (surface externe, aire des fissures et de la porosité ouverte) et V le volume de l'échantillon.

#### **IV. SYNTHÈSE**

Dans la littérature, les articles sont très majoritairement consacrés à la modélisation du relâchement des gaz de fission (Xénon et Krypton). Cela inclut toutes les étapes de transport du gaz de fission vers les joints de grains. Lorsque ces gaz de fission arrivent sur les joints de grains, ils sont considérés comme immédiatement relâchés. Par conséquent, peu d'articles traitent du gonflement intergranulaire. Notamment, aucun modèle simple de gonflement aux joints de grains n'est proposé dans la littérature. C'est pourquoi, l'analyse des résultats expérimentaux de gonflement intergranulaire nécessite le développement d'un modèle, dans le chapitre 5. Il s'est inspiré du modèle de gonflement intragranulaire isotherme, basé sur la coalescence des bulles, proposé par G.W.Greenwood et M.V. Speight [24].

Pour l'analyse des résultats expérimentaux de relâchement des gaz de fission, on utilise le modèle de Booth, fondé sur la diffusion des atomes de gaz de fission.

Cette étude bibliographique nous permettra d'interpréter, dans de bonnes conditions, les résultats qui sont présentés dans les chapitres suivants.

---

**CHAPITRE 3**

---

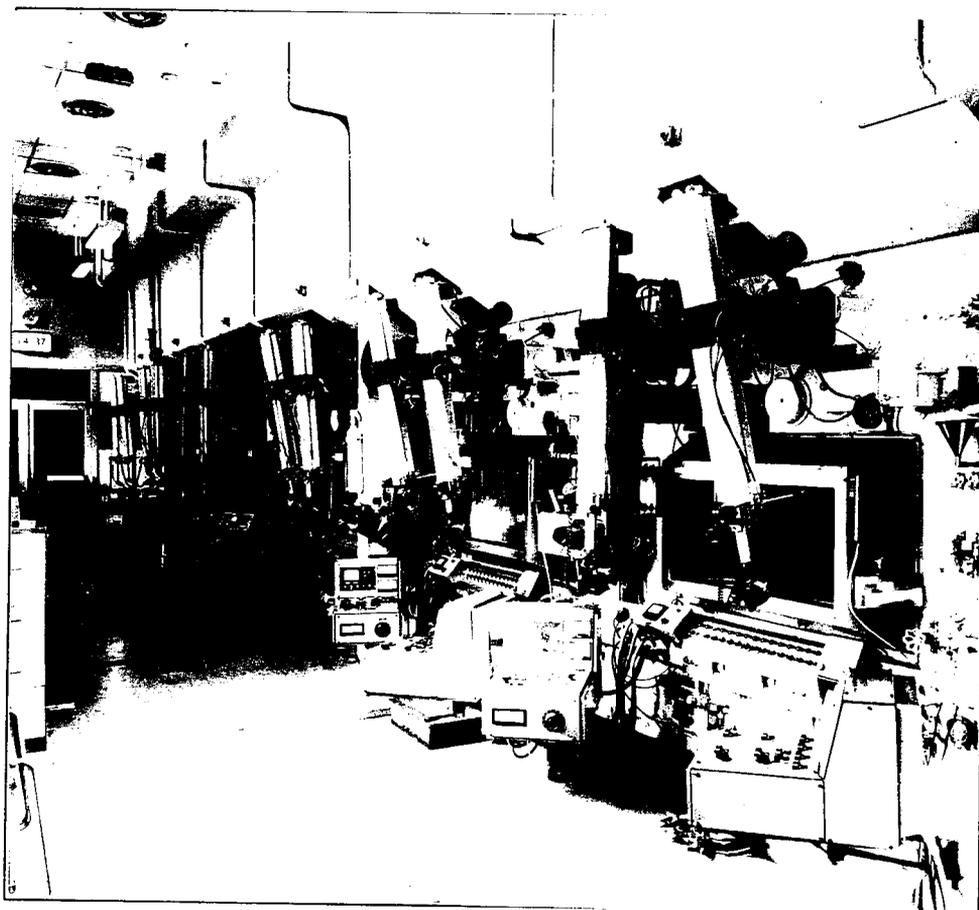
**DESCRIPTION COMPARATIVE DES TECHNIQUES DE  
MESURE DU GONFLEMENT**

## SOMMAIRE DU CHAPITRE 3

### DESCRIPTION COMPARATIVE DES TECHNIQUES DE MESURE DU GONFLEMENT

I. CONTRAINTES.....	35
I.1. Liées à l'environnement du laboratoire chaud .....	35
I.2. Liées aux échantillons .....	36
I.3. Liées à la distribution de la porosité .....	36
II. METHODES MACROSCOPIQUES .....	36
II.1. Méthode géométrique .....	37
II.2. Pycnométrie à mercure .....	37
II.3. Méthodes par pesée hydrostatique .....	37
II.3.1. Méthode classique .....	38
II.3.2. Méthode par pesée de la masse humide .....	38
II.3.3. Méthode avec vernissage .....	39
III. METHODES MICROSCOPIQUES : ANALYSE D'IMAGES .....	39
III.1. Définition.....	40
III.2. Relation stéréométrique .....	41
III.2.1. Fraction volumique .....	41
III.2.2. Relation entre la concentration en bulles et le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains .....	42
III.3. Principes généraux de l'analyse d'images.....	43
III.3.1. Acquisition et Traitement des images en niveaux de gris .....	43
III.3.2. Seuillage des images.....	44
III.3.3. Traitement des images binaires, notions de morphologie mathématique.....	44
a) Erosion .....	44
b) Dilatation .....	45
c) Ouverture .....	45
d) Reconstruction.....	45
IV. RESUME.....	45

Télemanipulateur



Cellule blindée

Figure 14 : Ligne de cellules

---

## CHAPITRE 3

---

### DESCRIPTION COMPARATIVE DES TECHNIQUES DE MESURE DU GONFLEMENT

Le gonflement est donné par :

$$G = \frac{V_{(f)} - V_{(i)}}{V_{(i)}}$$

où,  $V_{(f)} - V_{(i)}$  est la variation entre un état initial et un état final et  $V_{(i)}$  est le volume initial de l'échantillon.

Les méthodes pour mesurer le gonflement peuvent être classées en deux catégories : les méthodes macroscopiques qui consistent à déterminer des variations de volume par des mesures de masse volumique avant et après gonflement et les méthodes microscopiques qui déterminent le gonflement à partir d'observations puis d'analyses de la microstructure du matériau avant et après gonflement.

Pour juger de la faisabilité de ces méthodes dans nos laboratoires, ce chapitre débute par la présentation des contraintes liées à l'environnement du laboratoire chaud, à la géométrie des échantillons et à la distribution de la porosité.

#### I. CONTRAINTES

##### I.1. Liées à l'environnement du laboratoire chaud

Un laboratoire chaud est un laboratoire qui étudie des matériaux présentant une forte radioactivité. Les échantillons sont confinés dans des cellules blindées (Figure 14), qui protègent de l'irradiation et de la contamination. Des hublots en verre au plomb permettent de voir à l'intérieur des cellules.

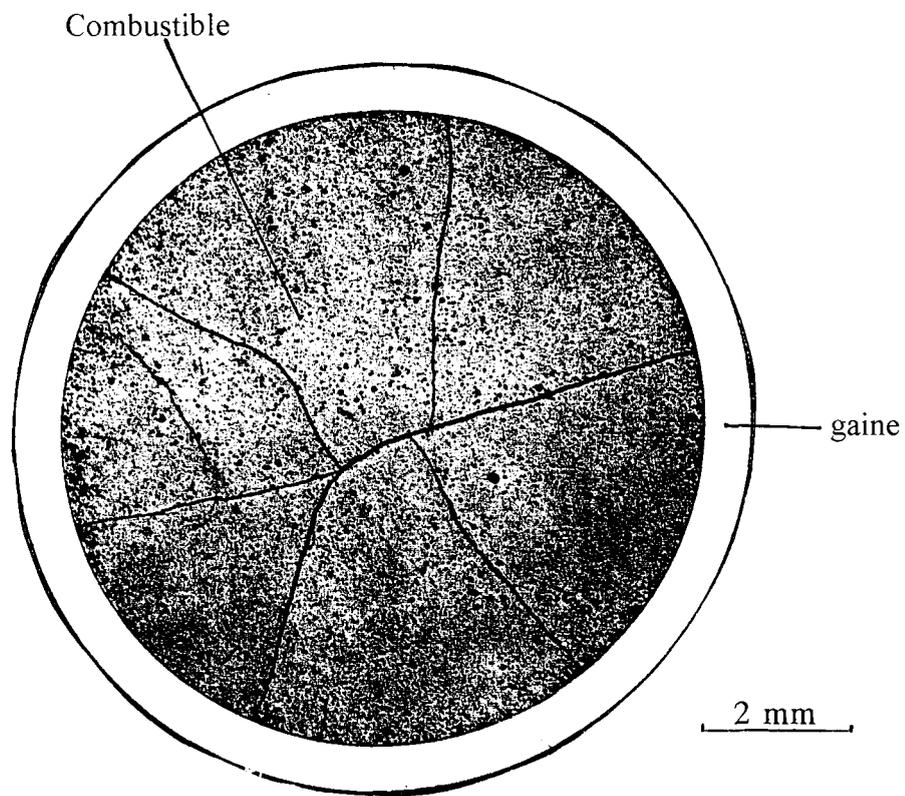


Figure 15 : Etat de fissuration d'une pastille d' $\text{UO}_2$  ayant fonctionné en R.E.P.

Le travail à distance s'effectue par l'intermédiaire de télémanipulateurs. Cela implique une simplification des actions à conduire en cellule.

La communication entre la ligne de préparations des échantillons et les cellules indépendantes contenant les appareillages d'examen (M.E.B., diffraction X) s'effectue par l'intermédiaire de châteaux (enceintes mobiles au plomb), qui contiennent les échantillons radioactifs, gérés par le groupe d'exploitation du bâtiment.

Enfin, le matériel en cellule se détériore sous l'effet de l'irradiation et nécessite parfois des réparations ou un remplacement par du matériel neuf.

L'environnement de laboratoire chaud entraîne donc de nombreuses contraintes, à la fois liées au travail à distance, par l'intermédiaire des télémanipulateurs, mais aussi aux transferts et aux réparations. **De ce fait, en laboratoire chaud, le temps mis pour analyser un échantillon est, en général, au moins le double du temps mis pour effectuer les mêmes opérations sur des matériaux non radioactifs.**

### **I.2. Liées aux échantillons**

L'oxyde d'uranium, après irradiation, est fissuré et fragile (Figure 15). En conséquence, la découpe conduit à des fragments de pastille de combustible de quelques millimètres de diamètre, de forme irrégulière. **Leur petite taille complique les opérations de préparation et d'analyse.**

### **I.3. Liées à la distribution de la porosité**

L'oxyde d'uranium est un matériau poreux. Il est constitué de porosités dites « ouvertes », qui ont un accès vers l'extérieur et de porosités dites « fermées », qui sont confinées dans la matrice (Figure 10 du chapitre 2). Nous verrons, plus loin, que **la porosité ouverte, importante dans nos échantillons, ne peut être mesurée par la technique classique utilisée dans le laboratoire.**

## **II. METHODES MACROSCOPIQUES**

Le gonflement G est déterminé à partir de mesures de la masse volumique des échantillons avant et après le gonflement.

Soient,  $\rho_i$  et  $\rho_f$  celles ci :

$$G = \frac{\rho_i - \rho_f}{\rho_f \left( 1 + \frac{\Delta m}{m_f} \right)} \quad (\text{III. 1})$$

où  $\Delta m$  est la perte de masse par relâchement des gaz de fission ;  
 $m_f$  est la masse de l'échantillon après traitement thermique.

Il existe plusieurs méthodes qui permettent de mesurer la masse volumique. Cependant, nous verrons que quasiment aucune de ces techniques ne convient en raison des nombreuses contraintes rencontrées.

### II.1. Méthode géométrique

C'est le rapport de la masse de l'échantillon sur le volume géométrique mesuré.

$$\rho = \frac{M_{\text{air}}}{V} + \rho_{\text{air}}$$

$M_{\text{air}}$  représente la masse apparente de l'échantillon dans l'air (g) ;

$V$ , le volume géométrique de l'échantillon ( $\text{cm}^3$ ) ;

$\rho_{\text{air}}$ , la masse volumique de l'air à la température et pression de la cellule ( $\text{g/cm}^3$ ).

**Cette méthode n'a pas pu être appliquée à notre étude car les échantillons, constitués de fragments de combustible, ont une géométrie mal définie.** Elle a cependant été utilisée pour qualifier, dans le chapitre 4, la technique de pesée hydrostatique avec vernissage, présentée ci-dessous.

### II.2. Pycnométrie à mercure

Dans un cadre général, la pycnométrie à mercure est une méthode parfaitement adaptée à la mesure du gonflement. Cependant, **elle n'a pu être développée**, car le mercure est interdit dans les cellules.

### II.3. Méthodes par pesée hydrostatique

Il existe deux types de porosité, la porosité ouverte et la porosité fermée. Une première méthode, relativement classique, nous permet d'accéder à la porosité fermée. Puis, on présente une méthode susceptible de nous donner la porosité ouverte. Cependant, dans

ce contexte, elle n'a pas pu être utilisée. Une troisième méthode, développée dans cette étude, permet d'approcher la mesure de la porosité totale.

### II.3.1. Méthode classique

C'est la méthode classique utilisée dans notre laboratoire, pour mesurer la masse volumique d'un solide. Fondée sur le principe d'Archimède, elle consiste à peser l'échantillon dans l'air puis à l'imprégner sous vide de bromobenzène ( $C_6H_5Br$ ), dont la densité est parfaitement connue dans le domaine de températures utilisées. Le vide favorise la pénétration du bromobenzène dans les porosités ouvertes. L'échantillon imprégné est ensuite pesé dans le bromobenzène. La connaissance des masses à sec et en immersion de l'échantillon permet d'accéder à sa masse volumique à partir de l'expression suivante :

$$\rho_h = \frac{M_{air}}{M_{air} - M_l} (\rho_l - \rho_{air}) + \rho_{air}$$

$M_{air}$  représente la masse apparente de l'échantillon dans l'air (g) ;

$M_l$ , masse apparente de l'échantillon dans le liquide (g) ;

$\rho_{air}$ , la masse volumique de l'air à la température et pression de la cellule ( $g/cm^3$ ) ;

$\rho_l$ , la masse volumique du liquide à la température et pression de la cellule ( $g/cm^3$ ) ;

$\rho_h$ , la masse volumique de l'échantillon ( $g/cm^3$ ).

Cette mesure ne prend donc pas en compte la mesure de la porosité ouverte. Or, dans le cas de l' $UO_2$ , une part importante de la porosité est ouverte. **Cette technique a cependant été utilisée, car elle apporte une information sur la porosité fermée.**

Il faut remarquer que la section d'un bloc peut transformer une porosité fermée en une porosité ouverte. Le volume ouvert lors de la coupe, avant traitement, est toutefois négligeable par rapport au volume ouvert par le traitement thermique.

### II.3.2. Méthode par pesée de la masse humide

Cette méthode, complémentaire de la méthode classique décrite ci-dessus, permet la mesure de la porosité ouverte de l'échantillon. Pour cela, on effectue une pesée supplémentaire de l'échantillon imprégné de liquide et secoué. Par différence avec la pesée de l'échantillon sec et connaissant la masse volumique du liquide, on en déduit le volume de la porosité ouverte de l'échantillon, occupé par le liquide.

Le bon fonctionnement de cette technique nécessite une bonne vision du séchage de la surface de l'échantillon. En effet, il faut intervenir à l'instant précis où la surface est sèche alors que le liquide remplit encore la porosité. Or, en raison du hublot, l'expérimentateur ne fait pas la différence entre surface sèche et surface humide. Pour cette raison, **cette technique n'a pas pu être utilisée.**

### II.3.3. Méthode avec vernissage

Elle a pour but d'utiliser la technique de pesée hydrostatique, facile à mettre en oeuvre en cellule blindée, pour mesurer la masse volumique géométrique. Pour éviter la pénétration du liquide dans la porosité ouverte, on a recours à un vernissage préalable des échantillons. Le vernis doit empêcher le liquide de remplir la porosité ouverte mais ne doit pas lui-même remplir cette dernière. La mesure de la masse volumique est effectuée sur l'ensemble. Par différence des masses avant et après vernissage et connaissant la masse volumique du vernis, le volume supplémentaire dû à l'enrobage est déterminé, ce qui permet d'obtenir la masse volumique initiale du matériau. La masse volumique est donné par :

$$\rho = \frac{m_1}{V_2 - V_1} = \frac{m_1}{\frac{m_2}{\rho_h} - \frac{m_2 - m_1}{\rho_v}}$$

où,  $m_1$  représente la masse de l'échantillon (g) ;

$V_1$ , le volume de l'enrobage (cm<sup>3</sup>) ;

$V_2$ , le volume du matériau enrobé (cm<sup>3</sup>) ;

$m_2$ , la masse de l'échantillon enrobé (g) ;

$\rho_h$ , la masse volumique hydrostatique du matériau.

$\rho_v$ , la masse volumique du vernis.

**Cette technique a été développée et adaptée à une manipulation en cellule. Sa qualification est présentée dans le chapitre suivant.**

## III. METHODES MICROSCOPIQUES : ANALYSE D'IMAGES

Le combustible réunit plusieurs contraintes, dues à la fois à l'environnement du laboratoire chaud, à la géométrie des échantillons et à la distribution de la porosité, qui mettent en échec la plupart des techniques macroscopiques classiques de la mesure du gonflement à partir de la masse volumique. **On a donc eu recours à une mesure microscopique de la masse volumique : l'analyse d'images.**

### III.1. Définition

Le gonflement  $G$  est défini comme le rapport de la variation de volume entre un état initial (i) et un état final (f) sur le volume initial de l'échantillon :

$$G = \frac{V_{(f)} - V_{(i)}}{V_{(i)}}$$

d'où,

$$\frac{V_{(f)}}{V_{(i)}} = G + 1 \quad (\text{III. 2})$$

Le volume  $V$  (initial ou final) de l'échantillon s'écrit comme la somme du volume occupé par la matière  $V(M)$  et de la porosité  $V(P)$  :

$$V = V(M) + V(P)$$

Le gonflement peut alors être défini par deux termes : le premier caractérise le gonflement gazeux  $Gg$  et le second définit le gonflement solide  $Gs$ .

$$G = Gg + Gs = \frac{V(P)_{(f)} - V(P)_{(i)}}{V_{(i)}} + \frac{V(M)_{(f)} - V(M)_{(i)}}{V_{(i)}}$$

Lors du traitement thermique à haute température, le gonflement  $G$  est principalement dû au gonflement gazeux. Le gonflement solide est considéré comme négligeable.

$$G \cong Gg \cong \frac{V(P)_{(f)} - V(P)_{(i)}}{V_{(i)}}$$

On peut aussi exprimer le volume occupé par la porosité  $V(P)$  à partir de la fraction volumique de la porosité  $V_v(P)$  et du volume total  $V$  de l'échantillon :

$$V(P) = V_v(P) \cdot V$$

$G$  s'écrit alors :

$$G \cong \frac{V_{(f)}}{V_{(i)}} V_v(P)_{(f)} - V_v(P)_{(i)}$$

En insérant l'expression (III. 2),  $G$  devient :

$$G \cong (G + 1) \cdot V_v(P)_{(f)} - V_v(P)_{(i)}$$

d'où

$$G \cong \frac{V_v(P)_{(f)} - V_v(P)_{(i)}}{1 - V_v(P)_{(f)}} \quad (\text{III. 3})$$

Cette relation ne fait intervenir que les fractions volumiques de la porosité initiale et finale, qui, comme nous allons le voir dans la partie suivante, sont accessibles par analyse d'images.

Espace	Paramètres spécifiques	
$R^3$	$V_v(P) = N_p(P)$	$S_v(P) = 4N_L(P)$
$R^2$	$A_A(P) = N_p(P)$	$L_A(P) = \pi N_L(P)$
$R^1$	$L_L(P) = N_p(P)$	$N_L(P)$
$R^0$	$N_p(P)$	

Tableau 2 : Relations stéréométriques dans le cas de l'analyse locale

avec

$V_v(P)$  : fraction volumique, de l'ensemble P

$A_A(P)$  : fraction surfacique, de l'ensemble P

$L_L(P)$  : fraction linéaire, de l'ensemble P

$N_p(P)$  : fraction des points, de l'ensemble P

$S_v(P)$  : surface spécifique, de l'ensemble P

$L_A(P)$  : périmètre spécifique, de l'ensemble P

$N_L(P)$  : nombre de connexité par unité de longueur, de l'ensemble P

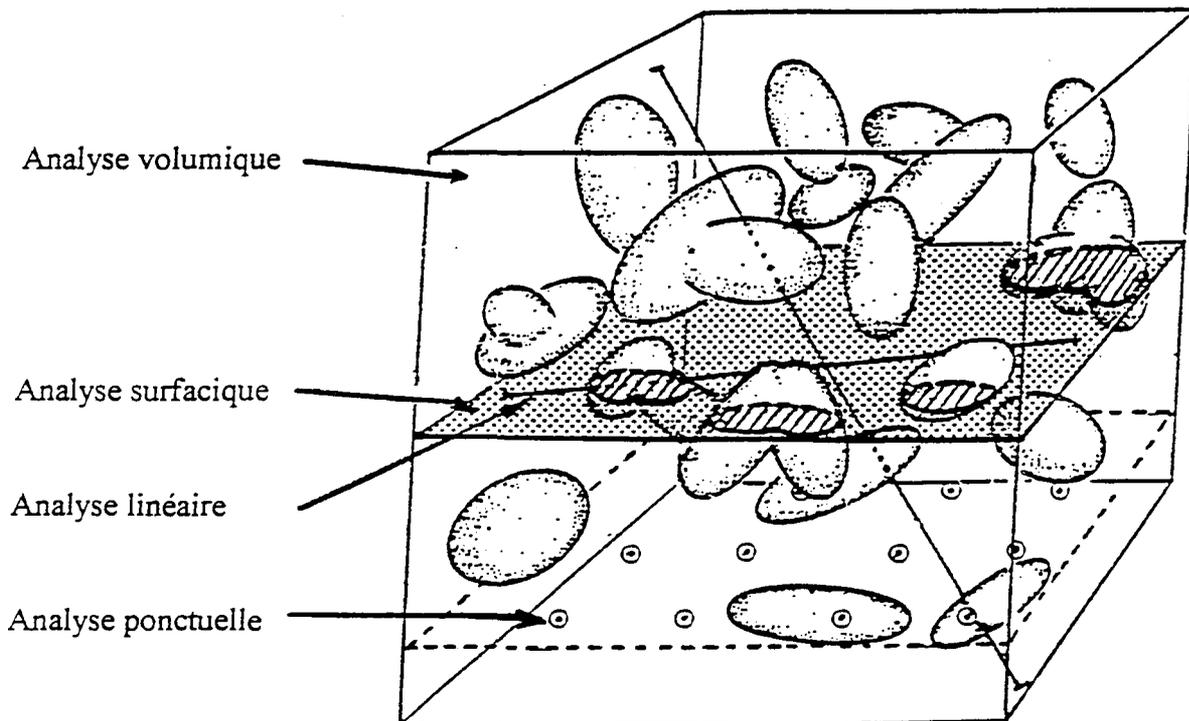


Figure 16 : Elément cubique contenant de la porosité

### III.2. Relation stéréométrique

Grâce à des relations utilisant les probabilités géométriques ou la géométrie intégrale, il est possible d'estimer un certain nombre de paramètres géométriques de l'espace  $\mathfrak{R}^3$  à partir de mesures dans un sous espace  $\mathfrak{R}^2$ ,  $\mathfrak{R}^1$  ou  $\mathfrak{R}^0$ . La seule hypothèse qu'il faut admettre est que la structure à analyser est la réalisation d'un ensemble aléatoire stationnaire, ce qui est généralement le cas pour les matériaux. Dans ces conditions, on peut écrire les relations stéréométriques, proposées dans le Tableau 2 [53].

#### III.2.1. Fraction volumique

On peut alors écrire l'égalité suivante :

$$V_v(P) = A_A(P) = L_L(P) = P_P(P) \quad (\text{III. 4})$$

$A_A(P)$  représente le taux surfacique de la porosité mesurée sur une section aléatoire du matériau et  $P_P(P)$  la proportion de points appartenant à cette section en tombant dans la phase  $p$  et  $L_L(P)$  la fraction linéique.

A titre d'exemple, pour obtenir la relation  $V_v(P) = A_A(P)$  par la géométrie intégrale, on peut considérer un élément de volume, limité par un cube d'arête de longueur  $L$  se trouvant à l'intérieur du matériau soumis à l'analyse (Figure 16).

$$A_A(P, z) = \frac{A(P, z)}{L^2} \quad (\text{III. 5})$$

avec  $A_A(P, z)$  : fraction surfacique du constituant  $P$  à la cote  $z$   
 $A(P, z)$  : surface totale du constituant  $P$  à la cote  $z$

La moyenne du taux surfacique de la porosité  $P$  est donnée par :

$$\overline{A_A(P)} = \int_0^L A_A(P, z) \cdot \frac{dz}{L}$$

En remplaçant  $A_A(P, z)$  par (III. 5),

$$\overline{A_A(P)} = \int_0^L \frac{A(P, z)}{L^3} \cdot dz$$

Comme l'intégrale  $\int_0^L A(P, z) \cdot dz$  est le volume total de la phase  $X$  dans le volume cubique  $V$ , nous obtenons :

$$V_v(P) = \overline{A_A(P)}$$

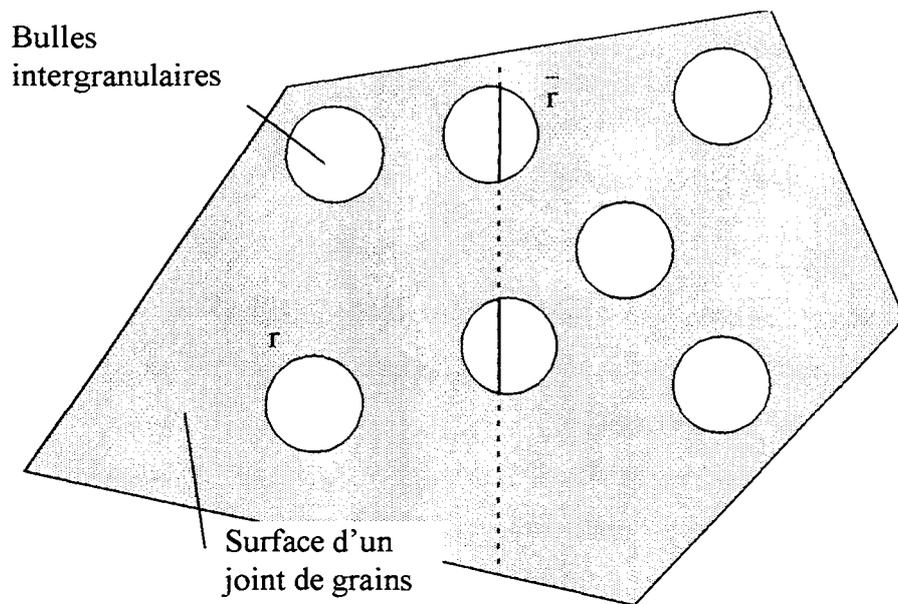


Figure 17 : Surface d'un joint de grains

D'après la relation (III. 4), la fraction volumique de la porosité sera donc estimée par le taux de points appartenant à la section  $P_p(P)$ , accessible par analyse d'images.

### III.2.2. Relation entre la concentration en bulles et le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains

Sachant que les joints de grains se répartissent au hasard dans le matériau, les relations du Tableau 2 restent valables. On peut donc appliquer ces relations aux bulles piégées par les joints de grains. En supposant une taille unique de bulles, on va chercher la relation qui existe entre la concentration en bulles  $N_v$  et le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains  $N_j$ .

D'après la relation stéréométrique (III. 4) (issue du Tableau 2), la fraction surfacique est égale à la fraction linéaire. Si on se place sur un joint grains, cela devient :

$$N_s(P) \pi r^2 = N_L(P) 2 \bar{r} \quad (\text{III. 6})$$

où  $\bar{r}$  est la demi corde moyenne de la section,  $r$  le rayon de la section occupée sur le joint de grain,  $N_s(P)$  le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains et  $N_L(P)$  le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grain (Figure 17). Or la corde moyenne est définie par :

$$\bar{r} = \frac{1}{r} \int_0^{\pi/2} r \cos \theta \cdot r \cos \theta \cdot d\theta$$

Après intégration,

$$\bar{r} = \frac{\pi}{4} r$$

En remplaçant  $\bar{r}$  dans l'équation (III. 6), on obtient :

$$N_s(P) = \frac{N_L(P)}{2r}$$

Or, pour une bulle lenticulaire (Figure 11),  $r$  et  $\rho$  le rayon de courbure de la bulle sont liés par :

$$r = \rho \sin \Psi$$

d'où

$$N_s(P) = \frac{N_L(P)}{2\rho \sin \Psi} \quad (\text{III. 7})$$

En outre, la concentration en bulles  $N_v(P)$  et le nombre de bulles par unité de surface de joints de grains  $N_s(P)$  sont liés par la relation :

$$N_V(P) = S_V(J) \times N_S(P)$$

où  $S_V(P)$  est la surface spécifique des joints de grains. Le Tableau 2 permet d'écrire aussi l'égalité suivante :

$$S_V(J) = 4 \cdot N_L(J)$$

où  $N_L(J)$  est égal à l'inverse de l'intercept moyen du grain  $\bar{\ell}$ . D'où

$$N_V(P) = \frac{4}{\bar{\ell}} N_S(P)$$

En remplaçant  $N_S(P)$  par la formule (III. 7), on obtient :

$$N_V(P) = \frac{2}{\bar{\ell}} \frac{N_L(P)}{\rho \sin \Psi} \quad (\text{III. 8})$$

Cette relation sera utilisée, dans le chapitre 5, pour le calcul du rayon de courbure moyen des bulles et le développement d'un modèle de gonflement intergranulaire.

### III.3. Principes généraux de l'analyse d'images

Pour automatiser les mesures stéréologiques, il est nécessaire d'utiliser un système de traitement et d'analyse d'images. D'une manière générale, un processus de traitement et d'analyse peut se décomposer en un certain nombre d'étapes :

- Acquisition et Traitement des images en niveaux de gris
- Seuillage des images
- Traitement des images binaires
- Mesures

#### III.3.1. Acquisition et Traitement des images en niveaux de gris

Les images des sections polies sont obtenues à partir d'un microscope électronique à balayage. Ces images sont en niveaux de gris. Elles sont numérisées suivant une trame de dimension 480 x 626 pixels. Le niveau de gris de chaque pixel est codé sur 8 bits, ce qui définit 256 niveaux de gris. Les images ainsi obtenues sont mémorisées dans le système de traitement et d'analyse ou envoyées sur la mémoire de masse du système, pour un traitement ultérieur.

Lorsque les images en niveaux de gris sont trop bruitées ou doivent être mises en forme pour d'autres traitements, nous disposons d'opérateurs, tels que des filtres ou des rehausseurs de contour. Dans notre cas, le fond de la matrice est suffisamment homogène, pour que l'on se passe de ce traitement.

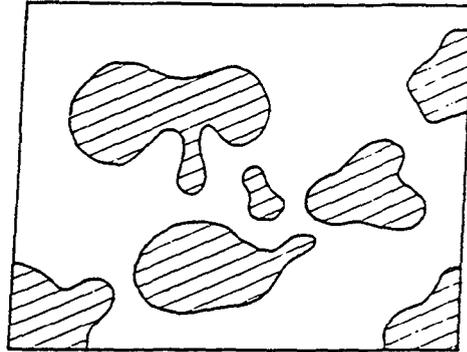


Figure 18 : Ensemble d'objets X

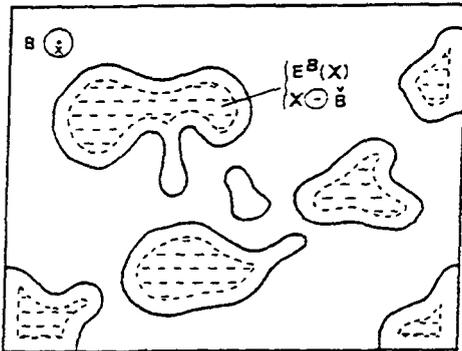


Figure 19 : Erosion de l'ensemble d'objets de la Figure par un élément structurant circulaire

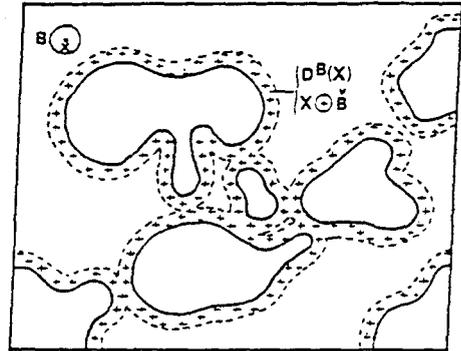


Figure 20 : Dilatation de l'ensemble d'objets de la Figure par un élément structurant circulaire

### III.3.2. Seuillage des images

Pour faire des mesures de type géométrique sur les images, il est nécessaire de passer à une description ensembliste, c'est à dire à une image binaire, par un opérateur de seuillage. Cette étape est une opération primordiale, puisque toute mesure dépendra de ce seuillage et de sa qualité par rapport à la structure vraie des objets analysés. Soit une fonction de gris  $f(x)$ , trois cas de seuillage peuvent se présenter :

- le seuillage par borne inférieure, qui correspond à la transformation de l'image en un ensemble  $X_t$  selon l'expression :

$$X_t = \{x \in \mathbb{R}^2 : f(x) \geq t\}$$

- le seuillage par borne supérieure tel que l'expression :

$$X^t = \{x \in \mathbb{R}^2 : f(x) \leq t\}$$

- le seuillage par borne inférieure et supérieure tel que :

$$X_{t_1}^{t_2} = \{x \in \mathbb{R}^2 : t_2 \geq f(x) \geq t_1\}$$

Ces opérations de seuillage peuvent être faites, soit manuellement par l'expérimentateur, en comparant l'image en niveaux de gris et l'image binaire, soit par un opérateur choisissant automatiquement le seuil par analyse statistique de l'image en niveaux de gris. Nous verrons plus loin quel opérateur nous avons choisi.

### III.3.3. Traitement des images binaires, notions de morphologie mathématique

Les images seuillées ne sont pas toujours directement utilisables pour la mesure. Il faut parfois les traiter pour éliminer des artefacts ou mettre en évidence certaines de leurs caractéristiques. A ce niveau, la morphologie mathématique est un outil pratiquement incontournable. Les principaux opérateurs morphologiques dont nous avons besoin sont : l'érosion, la dilatation, l'ouverture et l'ouverture-reconstruction [35] [56].

#### a) *Erosion*

Soit un espace  $\mathbb{R}^2$ , partiellement occupé par un ensemble  $X$  et un élément structurant  $B$  de géométrie connue (par exemple un cercle). Cet élément  $B_x$  est repéré par un centre et placé en  $x$  dans l'espace  $\mathbb{R}^2$ . Il est ensuite déplacé de telle sorte que son centre occupe toutes les positions  $x$  de l'espace. Pour chaque position, on pose la question suivante : est-ce que  $B_x$  est complètement inclus dans  $X$ ? L'ensemble des positions  $x$  correspondant à une réponse positive forme un nouvel ensemble  $Y$  appelé érodé de  $X$  par  $B$ . La Figure 19 présente un exemple d'érosion, par un élément circulaire  $B$ , de l'ensemble  $X$  de Figure 18.

*b) Dilatation*

Cette opération se définit de manière analogue. En prenant le même élément structurant  $B_x$ , on pose, pour chaque point de  $R^2$ , la question :  $B_x$  touche-t-il l'ensemble  $X$ ? L'ensemble des points de  $R^2$  correspondant aux réponses positives, forme un nouvel ensemble  $Y$ , appelé dilaté de  $X$  par  $B$ . La Figure 20 présente un exemple de dilatation relatif aux mêmes objets que ceux de la Figure 18 et utilisant le même élément structurant  $B$ .

*c) Ouverture*

Cette opération consiste tout d'abord à éroder un ensemble  $X$  par un élément structurant  $B$  puis à dilater l'ensemble érodé par l'élément structurant  $\check{B}$  (transposé de  $B$  qui est le symétrique de  $B$  par rapport à l'origine).

*d) Reconstruction*

Cet opérateur fait appel à la notion de dilatation géodésique. La dilatation géodésique diffère de la dilatation euclidienne classique par l'emploi d'un élément structurant géodésique. Pour définir cet élément, il faut se donner un ensemble de référence qui sera ici l'image initiale binaire à traiter. Par érosion de l'image initiale, nous obtenons une nouvelle image appelée image des marqueurs. Ces marqueurs seront dilatés infiniment et géodésiquement par rapport à l'image initiale. Le résultat donnera une image ouverte par reconstruction.

#### **IV. RESUME**

Trois techniques de mesures du gonflement ont été retenues. Chacune d'entre elles donne une information différente.

Les deux premières, macroscopiques, déterminent des variations de volume par des mesures de masse volumique avant et après gonflement : la technique de pesée hydrostatique, dans sa variante classique, permet d'accéder uniquement à la porosité fermée des échantillons ; la technique de pesée hydrostatique, dans sa variante améliorée, permet la mesure de la porosité totale.

La troisième méthode, microscopique, détermine le gonflement à partir d'observations puis d'analyses du matériau avant et après gonflement : cette technique d'analyse d'images permet la mesure de la porosité totale dans les limites de la résolution du système d'observation, qui sera, dans ce cas, un microscope électronique à balayage.

---

**CHAPITRE 4**

---

**RESULTATS EXPERIMENTAUX  
MESURES DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT**

## SOMMAIRE DU CHAPITRE 4

### RESULTATS EXPERIMENTAUX

#### MESURES DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT

I. CARACTERISTIQUES EXPERIMENTALES .....	50
I.1. Caractéristiques des échantillons .....	50
I.1.1. Caractéristiques de fabrication .....	51
I.1.2. Caractéristiques d'irradiation .....	51
a) Homogénéité dans la matrice .....	51
b) Evolution dans le temps .....	52
I.2. Caractéristiques des traitements thermiques .....	52
I.2.1. Installation .....	53
I.2.2. Traitements thermiques .....	53
II. DETERMINATION DU RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION .....	54
II.1. Dispositif expérimental .....	54
II.2. Résultats .....	54
II.2.1. Détermination de la fraction de gaz de fission relâché .....	54
II.2.2. Incertitude expérimentale .....	55
II.2.3. Effet du temps de maintien .....	55
II.2.4. Effet de la température .....	56
II.3. Comparaison à d'autres études expérimentales .....	56
III. DETERMINATION DU GONFLEMENT PAR PESEE HYDROSTATIQUE .....	56
III.1. Dispositif expérimental .....	56
III.2. Principe .....	57
III.3. Qualification .....	58
III.4. Précision de la mesure .....	58
III.4.1. Calcul de l'incertitude de mesure sur la masse volumique de l' $UO_2$ .....	58
III.4.2. Calcul de l'incertitude de mesure sur le gonflement .....	58
III.5. Résultats .....	59
IV. DETERMINATION DU GONFLEMENT PAR PESEE HYDROSTATIQUE AVEC VERNISSAGE .....	60

IV.1. Principe .....	60
IV.2. Qualification .....	61
IV.2.1. Détermination de la masse volumique du vernis.....	61
a) Masse volumique du vernis .....	61
b) Compatibilité chimique du vernis et du liquide de pesée.....	62
IV.2.2. Application de la méthode à des échantillons d'oxyde d'uranium de masse volumique géométrique connue.....	62
IV.3. Précision de la mesure.....	63
IV.3.1. Calcul de l'incertitude de mesure sur la masse volumique de l' $UO_2$ .....	63
IV.3.2. Calcul de l'incertitude de mesure sur le gonflement .....	64
IV.4. Résultats.....	64
V. DETERMINATION DU GONFLEMENT PAR ANALYSE D'IMAGES.....	64
V.1. Dispositif expérimental.....	64
V.1.1. Le Microscope Electronique à Balayage (M.E.B.) .....	64
V.1.2. Analyseur d'images .....	65
V.2. Préparation des échantillons .....	66
V.2.1. Problèmes posés par l'irradiation .....	66
V.2.2. Préparation métallographique .....	67
V.2.3. Problèmes introduits par le polissage .....	67
V.3. Qualification de la mesure .....	68
V.3.1. Acquisition des images en niveaux de gris.....	68
a) Images en niveaux de gris.....	68
b) Paramètres d'acquisition .....	68
c) Acquisition automatique.....	70
V.3.2. Traitement automatique des images : Seuillage .....	70
a) Seuillage par maximisation d'entropie .....	71
b) Comparaison du seuillage automatique et du seuillage manuel .....	71
V.3.3. Traitements des images binaires : Filtrage .....	72
a) Elimination du bruit par érosion et reconstruction.....	72
b) Elimination des artefacts et de la porosité initiale de taille importante .....	72
V.3.4. Analyse .....	72
a) Taux surfacique de la porosité.....	72
b) Distribution de la porosité par granulométrie par ouverture reconstruction .....	73
V.4. Précision de la mesure.....	74
V.4.1. Erreurs statistiques .....	74
V.4.2. Influence du seuillage sur la précision de la mesure .....	75
V.4.3. Influence de la mise au point.....	75
V.4.4. Erreurs dues à la préparation des échantillons .....	75
V.4.5. Bilan des incertitudes de la mesure .....	76
V.5. Résultats .....	76
V.5.1. Gonflement .....	76

V.5.2. Distribution de la porosité par granulométrie .....	77
V.6. Comparaison à d'autres études expérimentales .....	77
<b>VI. COMPARAISON DES DIFFERENTS RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS .....</b>	<b>77</b>
VI.1. Comparaison des résultats obtenus par les différentes méthodes .....	77
VI.2. Gonflement intragranulaire.....	78
VI.3. Porosité ouverte .....	79
<b>VII. RESUME.....</b>	<b>79</b>

---

## CHAPITRE 4

---

### RESULTATS EXPERIMENTAUX MESURES DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT

L'étude expérimentale consiste essentiellement à mesurer en laboratoire chaud, l'effet de la température et du temps de traitement thermique, sur le gonflement et sur le relâchement des gaz de fission. Pour cela, un combustible  $UO_2$ , irradié préalablement dans des conditions normales de fonctionnement, et donc contenant des gaz de fission dans son réseau, est traité thermiquement en four de laboratoire, à des températures élevées, allant de  $1100^{\circ}C$  à  $1715^{\circ}C$  et pour des durées variables de 5 minutes à 10 heures, simulant ainsi les conditions atteintes dans un transitoire de puissance.

Le gonflement des différents échantillons est déterminé par comparaison entre l'état irradié non traité et l'état irradié traité thermiquement. Il est mesuré par trois techniques qui, comme nous allons le voir, donnent une information différente : la pesée hydrostatique, la pesée hydrostatique avec vernissage et l'analyse d'images.

Au cours des traitements thermiques, les gaz de fission relâchés vers l'extérieur font l'objet d'une analyse qualitative et quantitative.

Avant de présenter les différentes mesures effectuées, ce chapitre décrit les caractéristiques des échantillons et les traitements thermiques effectués.

#### I. CARACTERISTIQUES EXPERIMENTALES

##### I.1. Caractéristiques des échantillons

Les échantillons sont constitués de la totalité des morceaux d' $UO_2$  récupérés lors du prélèvement d'un tronçon d'environ 8 mm de hauteur. Le combustible, très fissuré à sa sortie du réacteur, s'est morcelé lors de cette découpe, en fragments de quelques



Figure 21 : Morceaux de combustible  $UO_2$  irradié

<b>CRAYON COMBUSTIBLE</b>		
Nature du crayon		$UO_2$
Nombre de cycles		2
Gaz de remplissage		He
Pression interne (bar)		26
<b>COMBUSTIBLE</b>		
Enrichissement en $U_{235}$ (%)		4,5
Taille moyenne des grains ( $\mu m$ )		9,3
Densité par immersion ( $g/cm^3$ )		10,39
Densité par immersion (% Densité Théorique)		94,75

Tableau 3 : Données de fabrication de pastilles d' $UO_2$  vierges

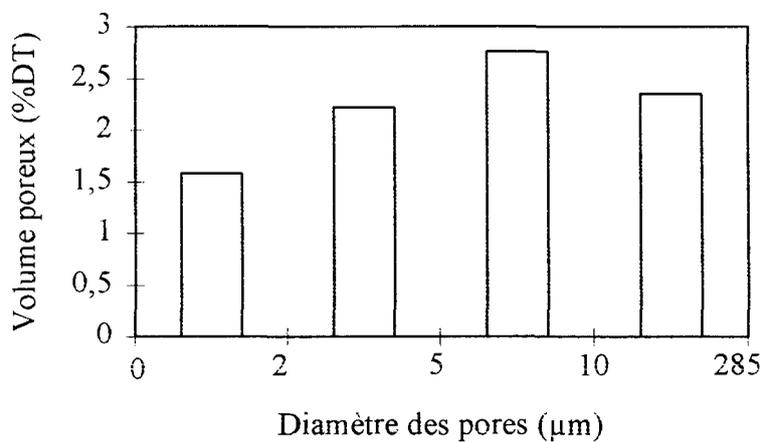


Figure 22 : Distribution de la porosité de fabrication

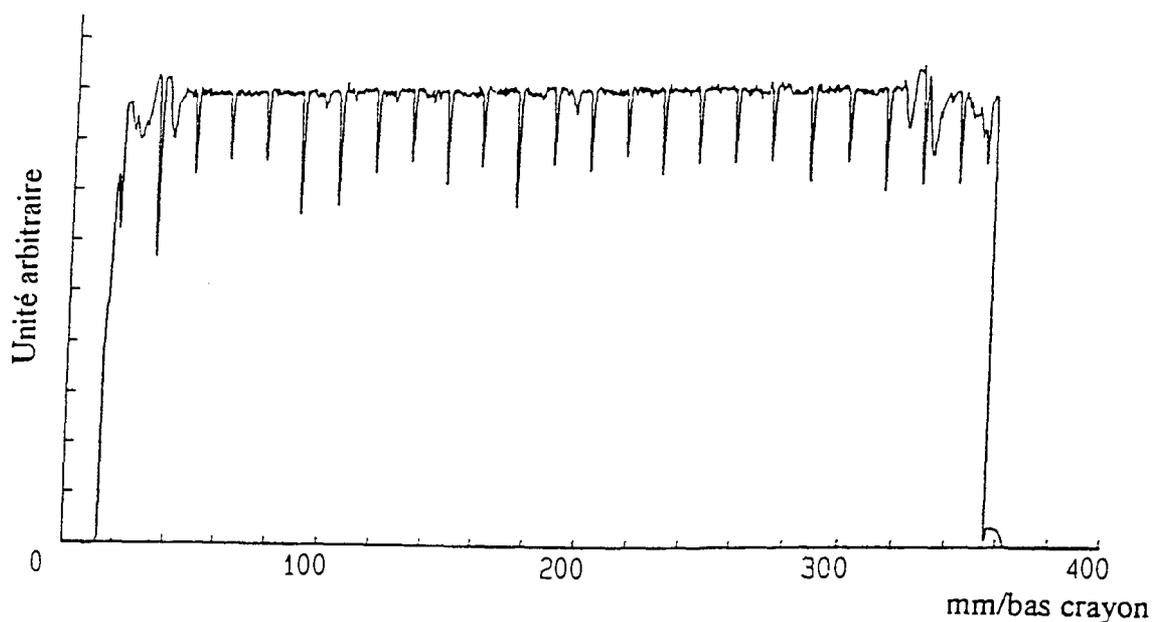


Figure 23 : Spectrométrie gamma effectuée sur une longueur de 350 mm, du combustible  $UO_2$  irradié (25 GWj/tU), dans laquelle ont été prélevés les échantillons

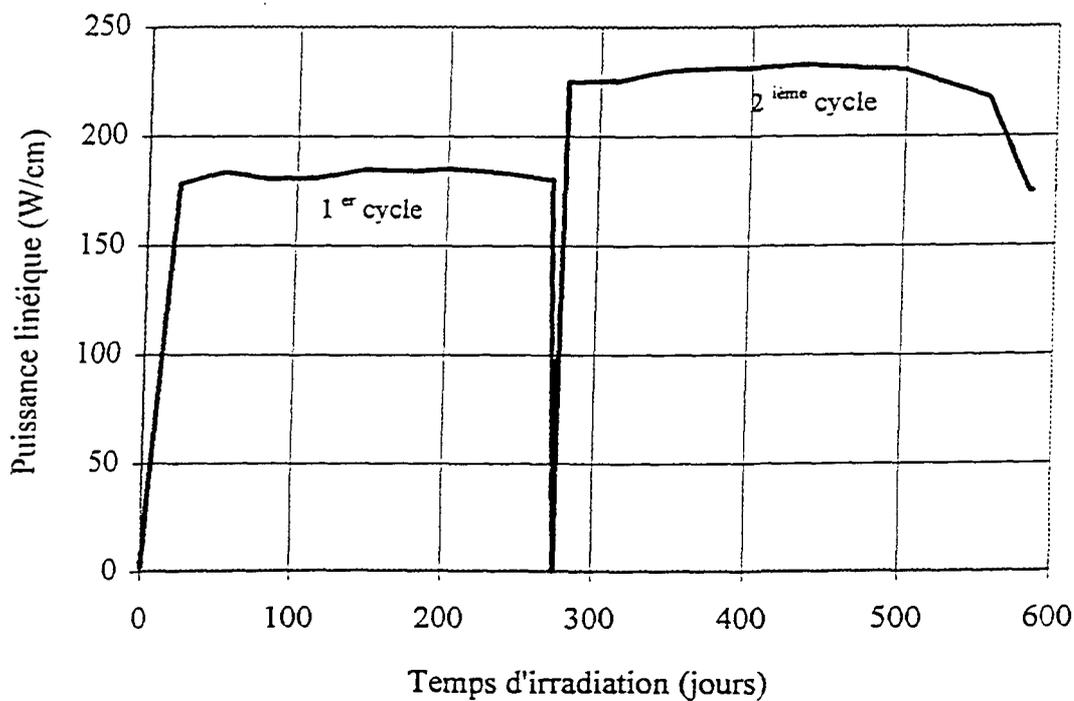


Figure 24 : Historique de puissance du combustible  $UO_2$  irradié (25 GWj/tU) dans lequel ont été prélevés les échantillons

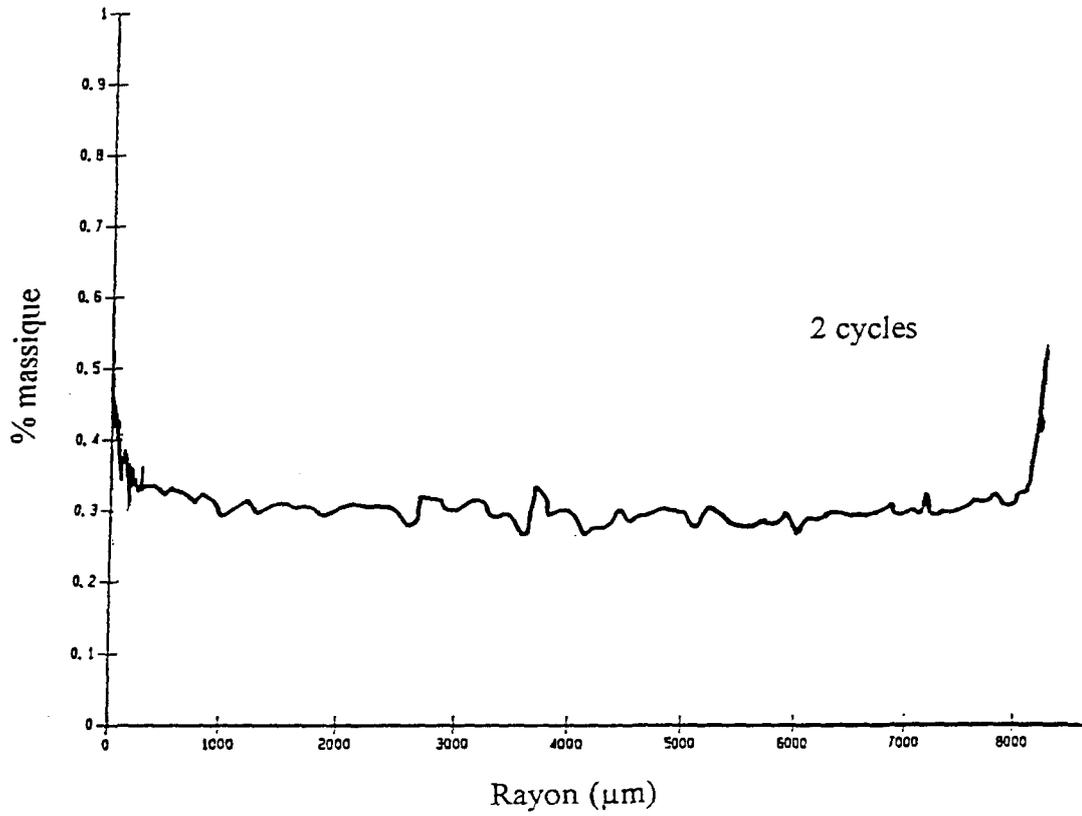


Figure 25 : Distribution radiale du Xénon, d'un combustible  $UO_2$ , ayant fonctionné pendant 2 cycles

millimètres de diamètre (Figure 21). Ces tronçons de 8 mm ont tous été découpés dans une longueur de 350 mm d'un crayon combustible, ayant fonctionné en R.E.P., dont la gaine a été retirée (les températures du traitement thermique sont supérieures à la température de fusion de la gaine).

#### I.1.1. Caractéristiques de fabrication

Les échantillons proviennent initialement de pastilles d' $\text{UO}_2$  vierges, dont les principales données de fabrication sont fournies dans le Tableau 3 [44]. Avant irradiation, le combustible a une masse volumique par pesée hydrostatique de  $10,39 \text{ g/cm}^3$ , ce qui correspond à une densité de 94,8% par rapport à sa masse volumique théorique. Les pores de fabrication sont essentiellement de taille supérieure à  $2 \mu\text{m}$  (Figure 22).

#### I.1.2. Caractéristiques d'irradiation

Le combustible a été choisi à un taux de combustion qui correspond à deux cycles, où le risque de rupture de la gaine est le plus élevé. Cela a, en outre, l'avantage de s'affranchir des défauts d'homogénéité des gaz de fission dans la matrice qui apparaissent à plus forts taux de combustion.

Les échantillons sont issus d'un crayon combustible  $\text{UO}_2$  ayant fonctionné en R.E.P. dans des conditions normales de fonctionnement pendant deux cycles, soit un taux de combustion de  $24675 \text{ MWj/tU}$ .

Une spectrométrie gamma a été effectuée sur le tronçon de 350 mm avant découpe, pour s'assurer que le taux de combustion est constant sur la longueur, ce qui est le cas (Figure 23). Son historique de puissance est présenté Figure 24 [44]. Après son passage en réacteur, la masse volumique par pesée hydrostatique, mesurée dans notre laboratoire conformément à la procédure propre à notre laboratoire [46], est égale à  $10,39 \text{ g/cm}^3$  soit 94,8% par rapport à sa masse volumique théorique.

L'irradiation a créé des atomes de gaz de fission en insertion ou en substitution dans la matrice d' $\text{UO}_2$ . Pour un taux de combustion massique de  $24675 \text{ MWj/tU}$ , la concentration N en atomes de gaz de fission est estimée à  $2 \cdot 10^{20} \text{ atomes/cm}^3$  [41].

##### a) *Homogénéité dans la matrice*

Au cours des deux cycles, le relâchement des gaz de fission vers l'extérieur est quasiment négligeable. A  $24675 \text{ MWj/tU}$ , il est de 0,18% [40]. La Figure 25 présente le profil radial de Xénon d'un échantillon irradié pendant 2 cycles, réalisé à l'aide d'une microsonde électronique. Ce profil montre que la répartition en Xénon sur toute la traversée

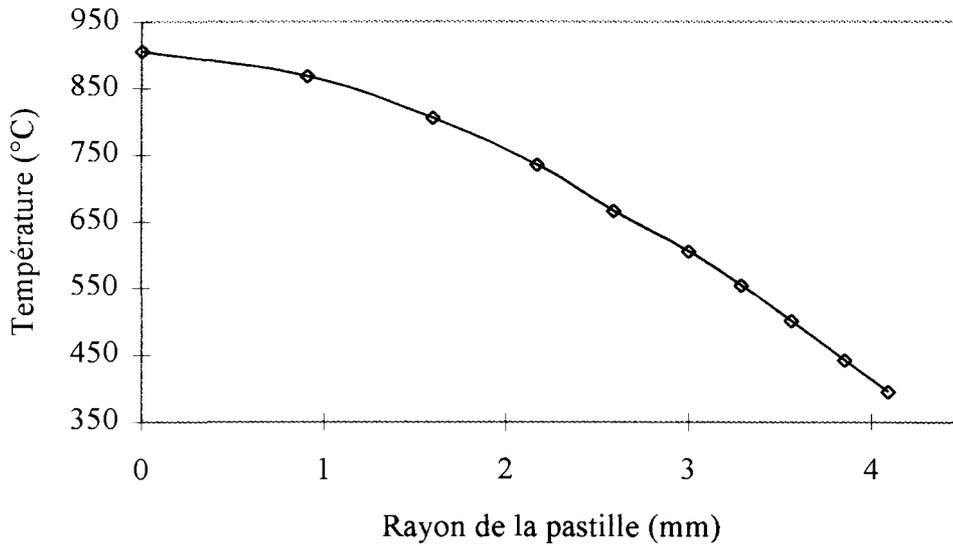


Figure 26 : Gradient maximal de température vu par le combustible  $UO_2$  étudié, lors de son irradiation en R.E.P.  
(calcul effectué par le code Toutatis 2D V2.0)

Krypton		Xénon	
Isotope	Demi-période	Isotope	Demi-période
$^{83}Kr$	Stable	$^{131}Xe$	Stable
$^{84}Kr$	Stable	$^{132}Xe$	Stable
$^{85}Kr$	10,6 ans	$^{133}Xe$	5,3 j
$^{85m}Kr$	4,4 h	$^{134}Xe$	Stable
$^{86}Kr$	Stable	$^{135}Xe$	9,2 h
$^{87}Kr$	78 mn	$^{136}Xe$	Stable
$^{88}Kr$	2,8 h		

Tableau 4 : Isotopes de Krypton et de Xénon

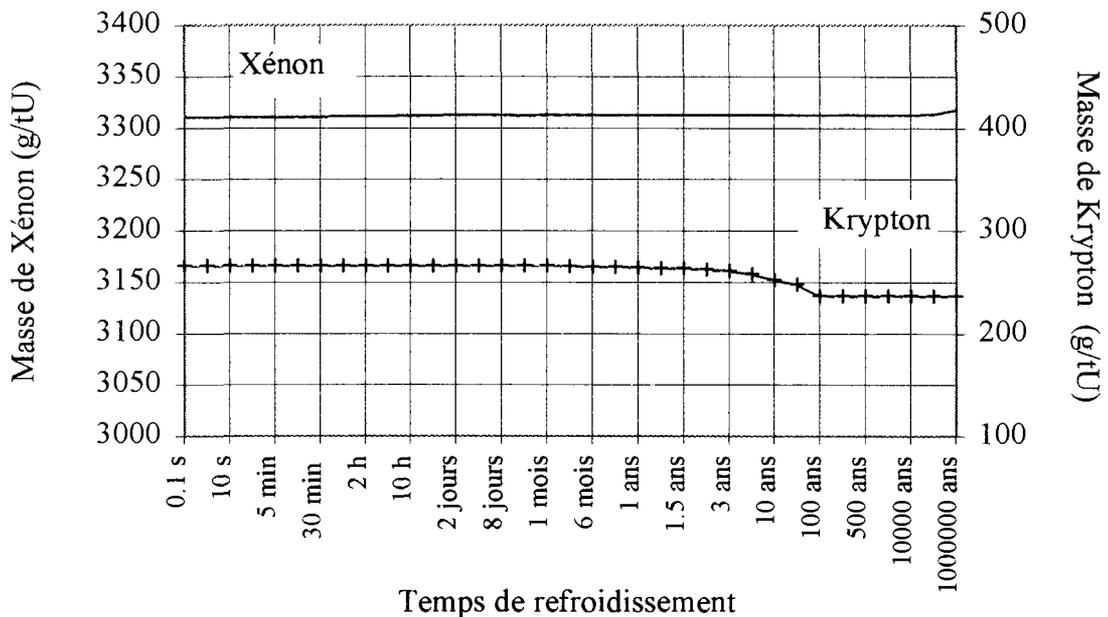


Figure 27 : Evolution de la masse de Xénon et de Krypton en fonction du temps de refroidissement, pour un taux de combustion de 21 GWj/tU

de l'échantillon est constante, sauf en périphérie extrême, où l'on observe une augmentation de la concentration en Xénon. Cet effet de bord est dû à la capture en périphérie des neutrons épithermiques par l'U238 qui se transforme en atome fissile de Pu239, ce qui augmente le taux local de combustion.

Les traitements thermiques ont été effectués sur l'ensemble des morceaux d'un tronçon, de façon à simuler le comportement d'une pastille entière. Lors des mesures macroscopiques de densité et de relâchement, la quasi-totalité des morceaux a été prise en compte afin de rendre négligeable l'effet du bord. Pour les mesures locales d'analyse d'images et les micrographies, on s'est placé systématiquement au centre des morceaux.

D'autre part, lors de son irradiation en R.E.P, le combustible étudié a été soumis à un gradient thermique radial dont la température à coeur ne dépasse pas 1100°C (Figure 26). Mais à ces températures, les mécanismes de diffusion ne sont pas activés thermiquement. Les différences de température entre le centre et la périphérie ne vont donc pratiquement pas modifier l'état chimique des gaz de fission du combustible. Dans toute la pastille, les gaz de fission sont considérés dissous dans la matrice ou sous forme de microbulles.

#### *b) Evolution dans le temps*

Nous étudions le comportement des gaz de fission dans une installation hors pile d'un combustible d'UO<sub>2</sub>, qui n'est plus soumis à l'environnement neutronique du réacteur. Les gaz de fission à vie courte comme par exemple le <sup>87</sup>Kr et le <sup>133</sup>Xe (Tableau 4) disparaissent et d'autres se forment par décroissance radioactive. On peut donc s'interroger sur la quantité des gaz de fission du combustible, qu'il reste, lors de son séjour, hors pile. La Figure 27 présente l'évolution de la masse de Xénon et de Krypton hors pile en fonction du temps après un taux de combustion de 21 GWj/tU : la masse de Xénon ne varie quasiment pas au cours du temps de refroidissement et la masse de Krypton diminue d'environ 0,5% par rapport à la masse totale de Krypton et de Xénon, au bout de 10 ans hors pile. Le combustible hors pile contient donc une concentration en produits de fission gazeux (Xénon et Krypton) voisine de celle en réacteur, qui reste quasiment constante dans le temps.

### **I.2. Caractéristiques des traitements thermiques**

Le choix des températures et des temps de maintien s'est fait en tenant compte des conditions du transitoire de puissance simulé expérimentalement.

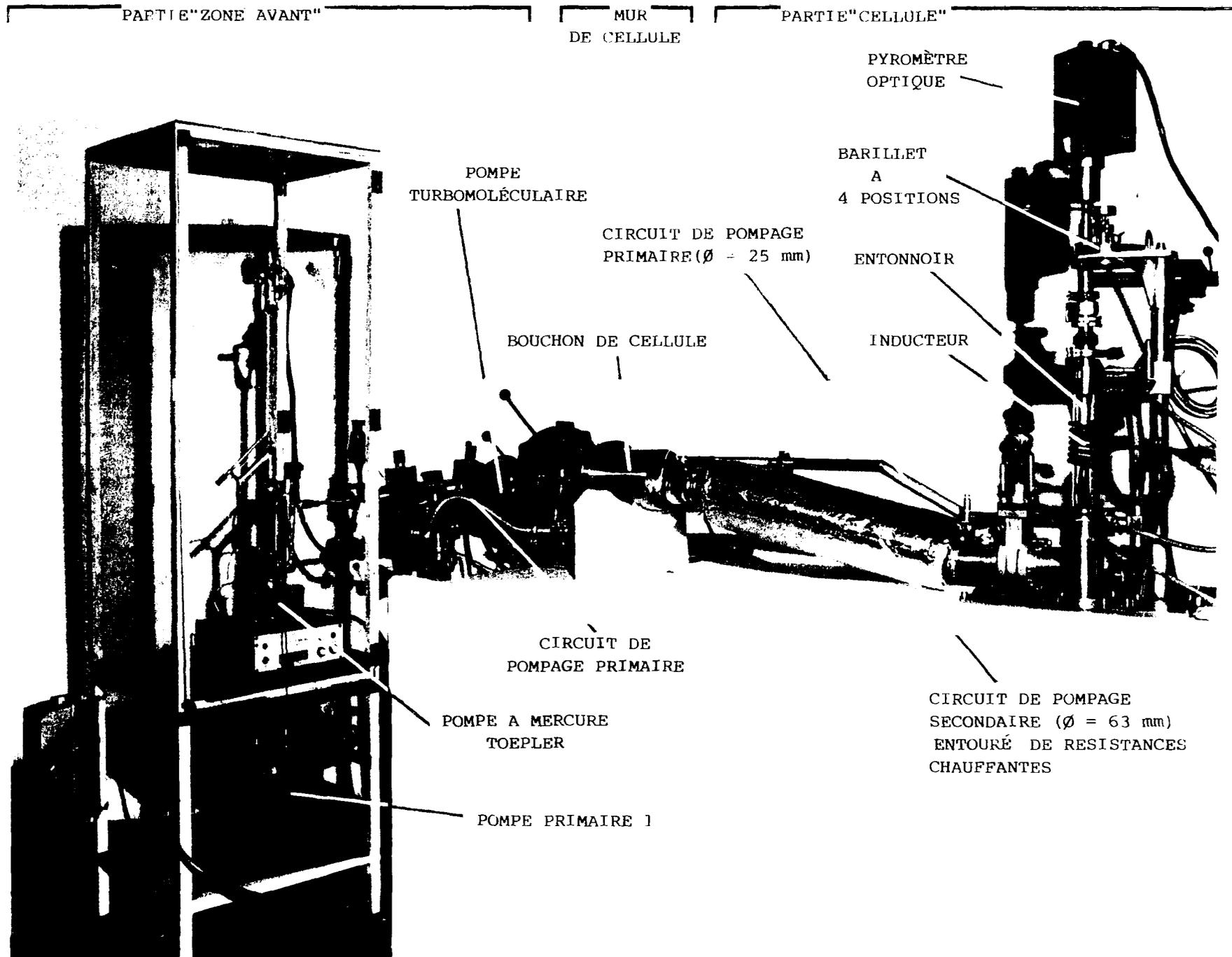


Figure 28 : Vue de l'ensemble de l'installation de traitements thermiques

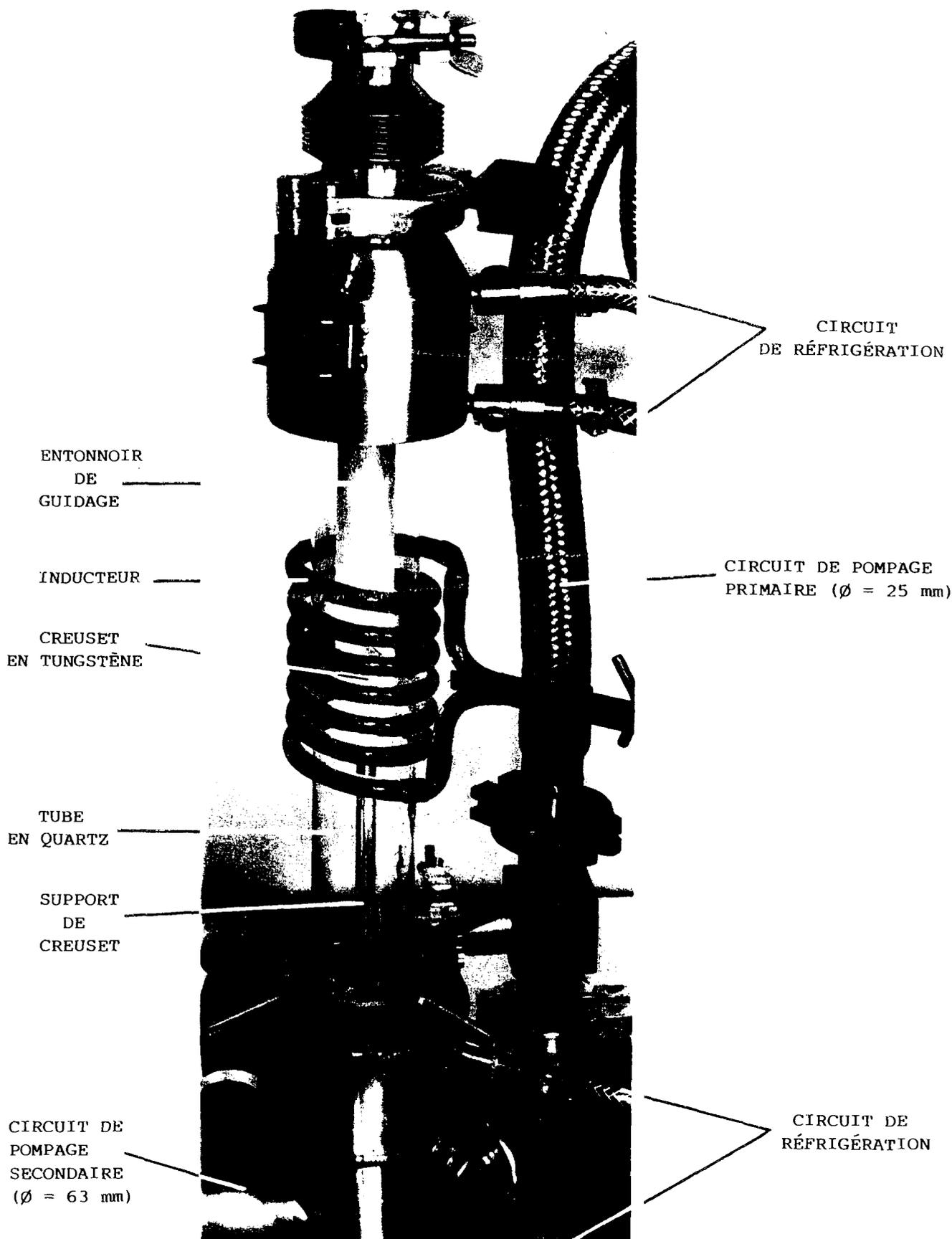


Figure 29 : Chauffage par induction

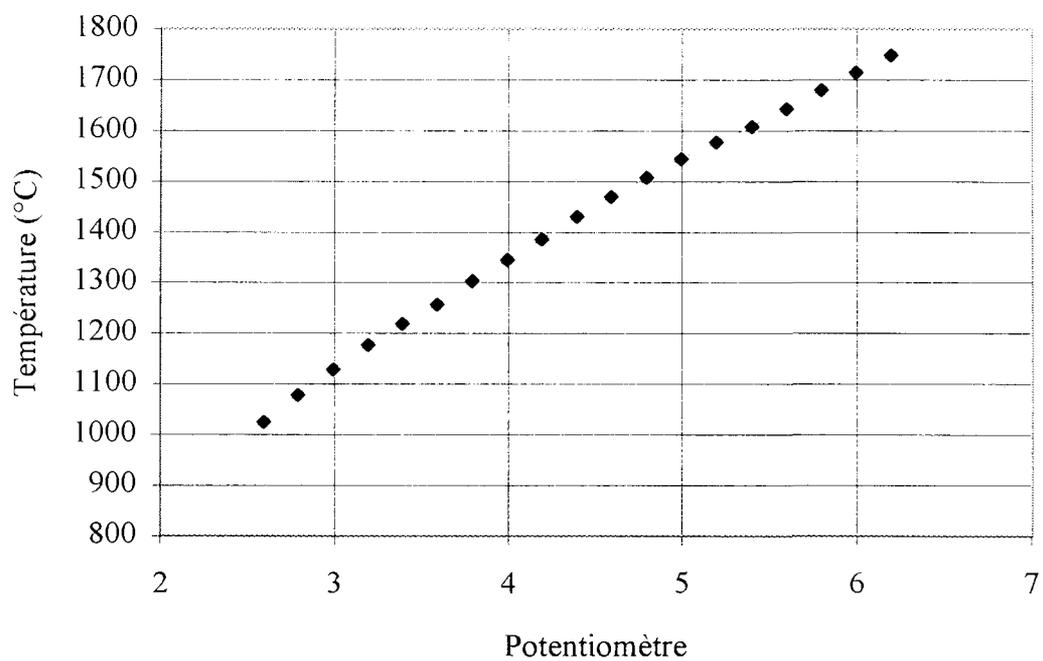


Figure 30 : Etalonnage du four H.F.

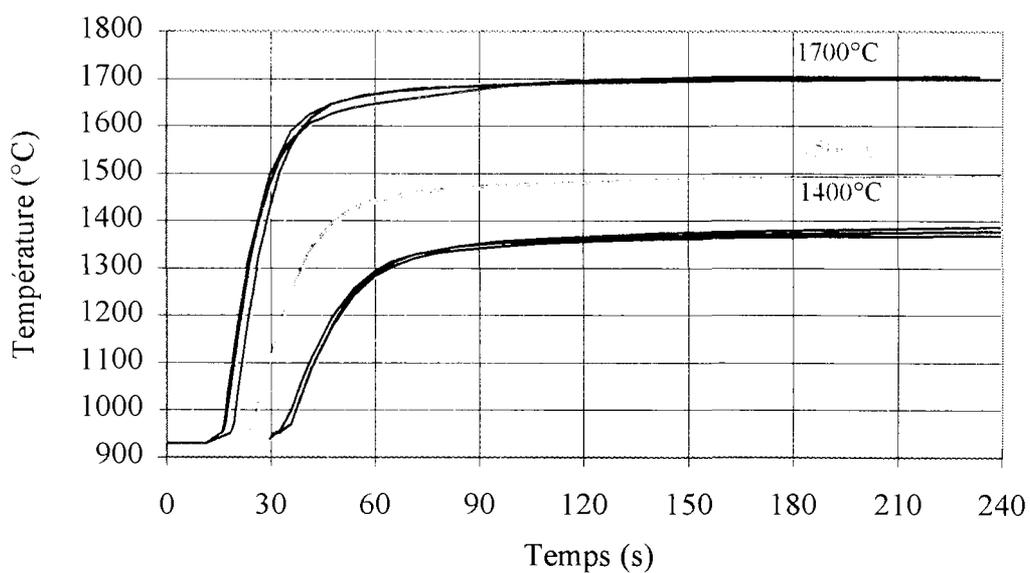


Figure 31 : Vitesse de montée en température

### I.2.1. Installation

Placés sous vide dans un creuset, les échantillons sont chauffés, par induction, dans un four à haute fréquence du laboratoire. La mise sous vide a un double avantage : elle permet de récupérer les gaz de fission et évite l'altération de la surface des échantillons par une atmosphère oxydante (traitements sous air). Une vue globale du four et du système de prélèvement des gaz de fission est visible sur la Figure 28.

Le four, qui contient donc les échantillons, est actuellement placé en « cellule blindée ». Il est composé d'une bobine d'induction (inducteur), d'un circuit de refroidissement, du creuset en tungstène, d'un tube en quartz.

La seconde partie de prélèvement des gaz de fission a été installée à l'extérieur de la cellule blindée et communique avec cette dernière, par l'intermédiaire d'un tube obturé par un bouchon. Elle est détaillée dans le paragraphe II de ce chapitre. La Figure 29 montre le four en état de marche.

Le creuset contenant l'échantillon est en tungstène. Il a un diamètre externe de 13 mm, une épaisseur de 1mm et une hauteur de 22 mm.

Le four a été préalablement étalonné à l'aide d'un pyromètre optique bichromatique (Figure 30). La mesure de la température a été effectuée sur le fond du creuset. La température maximale autorisée par l'installation est de 1750°C. Les températures sont données à  $\pm 20^\circ\text{C}$ .

### I.2.2. Traitements thermiques

La procédure de traitement thermique consiste à charger tout d'abord l'échantillon dans le creuset quand le four est froid, puis à le mettre sous vide. Après avoir indiqué la consigne de température, à l'aide d'un potentiomètre, l'installation est mise sous tension. La température se stabilise en 2 minutes et demi. A la fin du temps de traitement, le four est éteint. Le temps de refroidissement, pour revenir à une température inférieure à 1000°C où les mécanismes ne sont plus actifs, est d'environ deux minutes. Lorsque l'installation est revenue à température ambiante, l'échantillon est retiré du creuset.

On s'est attaché à avoir des montées en température les plus reproductibles possibles, en effectuant des prééglages de l'appareil avant la mise sous tension de l'installation. Ainsi, on part toujours dans les mêmes conditions. Toutefois, on n'a pas de véritable contrôle sur cette montée. Trois essais, pour trois températures de consignes différentes, ont été menés dans les mêmes conditions (Figure 31). Ils montrent que les réponses en températures du four sont voisines d'une mesure à l'autre. La montée en

température du four est très rapide : pour une température de consigne de 1500°C, le four atteint 1440°C en 60s, soit 96% de la température de consigne.

Les échantillons ont été traités à des températures allant de 1130°C à 1715°C et des temps de maintien de 5 minutes à 10 heures. La matrice des traitements effectués est présentée dans le Tableau 5. On reviendra sur la représentativité de ces traitements thermiques à la fin de la thèse, dans le chapitre 5.

## II. DETERMINATION DU RELACHEMENT DES GAZ DE FISSION

### II.1. Dispositif expérimental

Les gaz de fission sont prélevés du four à l'aide d'un circuit de pompage, constitué d'une pompe primaire (pompe à palettes) et d'un circuit de pompage secondaire (pompe turbomoléculaire). Les gaz de fission extraits, sont placés par une pompe à mercure « TOEPLER » dans une burette où leur volume est mesuré. Les gaz de fission sont ensuite récupérés dans une ampoule. L'installation est présentée sur la Figure 28. L'analyse des ampoules, effectuée par spectrométrie de masse, a été sous traitée à un autre laboratoire du C.E.A. La première ampoule est placée avant la mise en route de l'installation. La dernière ampoule est prélevée 5 mn après l'arrêt du four.

### II.2. Résultats

Pour déterminer la cinétique du relâchement des gaz de fission aux différentes températures, plusieurs ampoules par échantillon traité ont été prélevées au cours du temps de maintien.

#### II.2.1. Détermination de la fraction de gaz de fission relâchés

Le relâchement des gaz de fission (Xénon et Krypton) a été caractérisé respectivement par la fraction de Xénon et de Krypton relâchés  $f_{Xe}$  et  $f_{Kr}$ . Elle est définie par le rapport du volume de Xénon (ou de Krypton) relâchés lors du traitement thermique par l'échantillon et du volume du gaz de fission formé de Xénon (ou de Krypton) par l'irradiation.

$$f_{Xe}(\%) = \frac{V_{Xe \text{ relâché}}}{V_{Xe \text{ formé}}} \times 100 \quad (\text{IV. 1}) \quad \text{et} \quad f_{Kr}(\%) = \frac{V_{Kr \text{ relâché}}}{V_{Kr \text{ formé}}} \times 100 \quad (\text{IV. 2})$$

1130°C			1410°C			1545°C		
Temps (mn)	f <sub>Xe</sub> (%)	f <sub>Kr</sub> (%)	Temps (mn)	f <sub>Xe</sub> (%)	f <sub>Kr</sub> (%)	Temps (mn)	f <sub>Xe</sub> (%)	f <sub>Kr</sub> (%)
Traitements thermiques d'une durée totale de 7 mn								
			7	0,2	0,2	7	1,2	0,9
Traitements thermiques d'une durée totale de 15 mn								
						5	2,0	1,7
						10	3,1	2,6
						17	3,6	2,9
Traitements thermiques d'une durée totale de 30 mn								
						10	3,0	2,5
						20	3,6	3,0
						32	3,9	3,3
Traitements thermiques d'une durée totale de 1 h								
			15	0,6	0,5	15	2,1	1,7
			30	0,8	0,6	30	3,1	2,4
			62	1,0	0,8	45	3,7	2,9
						62	4,1	3,3
Traitements thermiques d'une durée totale de 2 h								
Traitements thermiques d'une durée totale de 5 h								
30	0,1	0,0	15	1,1	0,9	15	3,2	3,2
60	0,1	0,0	30	1,2	1,0	30	3,9	3,8
120	0,1	0,0	60	1,3	1,1	60	4,5	4,3
303	0,1	0,0	302	1,7	1,4	180	5,7	5,2
						302	6,3	5,7
Traitements thermiques d'une durée totale de 10 h								
						15	3,7	3,0
						30	4,4	3,6
						60	5,1	4,1
						120	5,6	4,6
						300	6,8	5,6
						602	8,0	6,1

Tableau 6a : Relâchement des gaz de fission en fonction de la température et du temps

1630°C			1715°C					
Temps (mn)	f <sub>Xe</sub> (%)	f <sub>Kr</sub> (%)	Temps (mn)	f <sub>Xe</sub> (%)	f <sub>Kr</sub> (%)	Temps(mn)	f <sub>Xe</sub> (%)	f <sub>Kr</sub> (%)
Traitements thermiques d'une durée totale de 7 mn								
7	4,6	3,7	7	13,8	10,8			
Traitements thermiques d'une durée totale de 15 mn								
			5	11,2	8,9			
			10	13,2	10,5			
			17	14,3	11,4			
Traitements thermiques d'une durée totale de 30 mn								
			5	13,2	10,5	10	12,6	10,0
			10	15,6	12,3	20	14,4	11,4
			15	16,9	13,4	32	15,7	12,4
			20	18,5	14,5			
			25	20,0	15,7			
			32	21,7	17,0			
Traitements thermiques d'une durée totale de 1 h								
15	5,8	6,9	15	11,4	9,0			
30	6,8	7,6	30	12,7	9,9			
62	7,4	8,1	45	13,4	10,5			
			62	14,2	11,1			
Traitements thermiques d'une durée totale de 2 h								
			5	8,7	6,9			
			15	16,8	12,9			
			30	19,7	15,2			
			45	22,6	17,5			
			60	23,8	19,7			
			75	25,0	21,2			
			90	26,2	22,6			
			105	27,4	23,9			
			122	28,6	24,9			
Traitements thermiques d'une durée totale de 5 h								
15	6,4	5,1	15	10,0	7,9			
30	7,1	5,6	30	11,6	9,2			
60	7,8	6,2	60	13,8	10,9			
302	9,5	7,5	302	26,3	20,7			
Traitements thermiques d'une durée totale de 10 h								
			15	11,1	8,7			
			30	12,7	10,0			
			60	15,0	11,8			
			120	17,5	13,7			
			300	23,2	18,9			
			602	30,6	24,5			

Tableau 6b : Relâchement des gaz de fission en fonction de la température et du temps

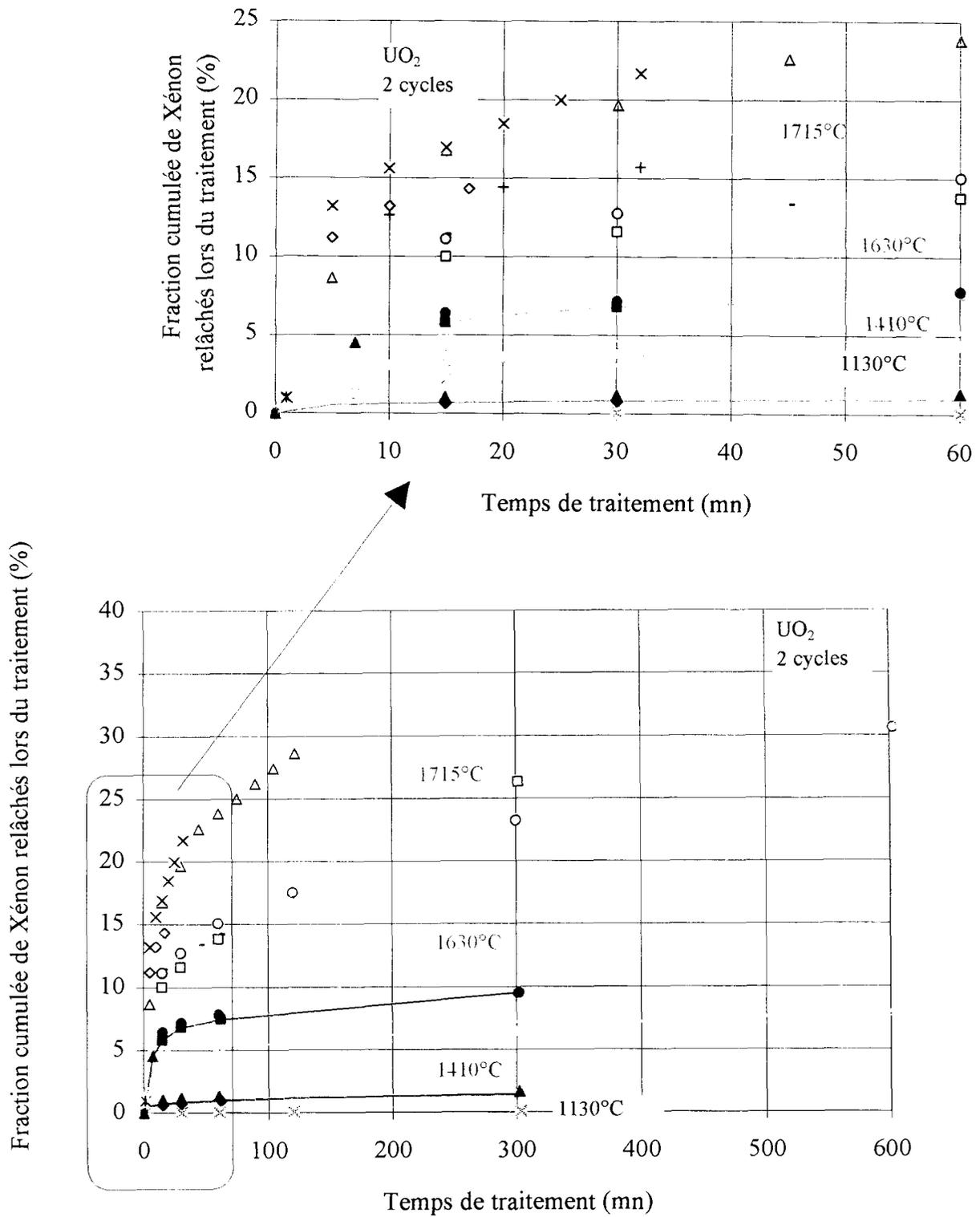


Figure 32 : Relâchement du Xénon, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

*Incertitude relative de mesure sur le relâchement :  $\pm 2,5\%$*

*Incertitude absolue de mesure sur la température :  $\pm 20^\circ C$*

Température \ Temps	1130°C	1410°C	1545°C	1630°C	1715°C
5 mn					
15 mn					
30 mn					
60 mn					
120 mn					
300 mn					
600 mn					

 Traitements thermiques effectués

Tableau 5 : Traitements thermiques effectués

Le volume de gaz de fission relâchés, lors du traitement thermique, est calculé par :

$$V_{Xe \text{ ou } Kr \text{ relâché}} = Y_i \times V_t \quad (\text{IV. 3})$$

où  $Y_i$  est le pourcentage de Xénon ou de Krypton, mesuré par spectrométrie de masse  
 $V_t$  est le volume total de gaz prélevé (cm<sup>3</sup>).

Le volume formé de Xénon ou de Krypton, par l'irradiation (24675 MWj/tU), pour ce type de combustible (enrichi à 4,5% en U235, est donné par la formule [ 41]:

$$V_{Xe \text{ formé}} = 0,625 \times M_{UO_2} \quad (\text{IV. 4}) \quad V_{Kr \text{ formé}} = 0,0943 \times M_{UO_2} \quad (\text{IV. 5})$$

où  $V_{Xe \text{ ou } Kr \text{ formé}}$  est le volume formé de Xénon ou de Krypton (cm<sup>3</sup>) ;  
 $M_{UO_2}$  est la masse d'UO<sub>2</sub> (g).

On néglige le relâchement des gaz de fission lors de l'irradiation estimé à 0,18% [ 41]. Les résultats sont présentés dans le Tableau 6.

### II.2.2. Incertitude expérimentale

La fraction de Xénon et de Krypton relâchés sont respectivement données par les formules (IV. 1) et (IV. 2).

Le volume de gaz de fission relâchés, lors du traitement thermique, est donné par l'expression (IV. 3). Le pourcentage de gaz de fission par spectrométrie de masse est mesuré à 1% près en relatif pour les valeurs de Xénon et à 2,5% près pour les valeurs de Krypton. L'incertitude relative sur le volume mesuré par la burette est de 2,5 %.

Le volume formé de Xénon ou de Krypton se calcule à partir des formules (IV. 4) et (IV. 5). Il est donné avec une incertitude de 5%. Ces incertitudes déterminent la fourchette maximale des mesures et sont donc définies à  $3\sigma$ . L'incertitude associée est donnée par :

$$\frac{\Delta f}{f} = \sqrt{\left(\frac{\Delta Y_i}{3 Y_i}\right)^2 + \left(\frac{\Delta V_t}{3 V_t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta V_{formé}}{3 V_{formé}}\right)^2} \quad \text{à } 1 \sigma$$

L'incertitude totale est donc de  $\pm 2,5\%$  à  $1\sigma$ .

### II.2.3. Effet du temps de maintien

Les courbes du relâchement du Xénon, qui est le gaz de fission majoritaire (85%), cumulé dans le temps, pour différentes températures, sont présentées sur la Figure 32 (celles du Krypton, qui sont quasiment identiques, sont présentées en Annexe 6). Elles traduisent **deux allures différentes** : une **libération des gaz de fission initiale rapide atteignant en**

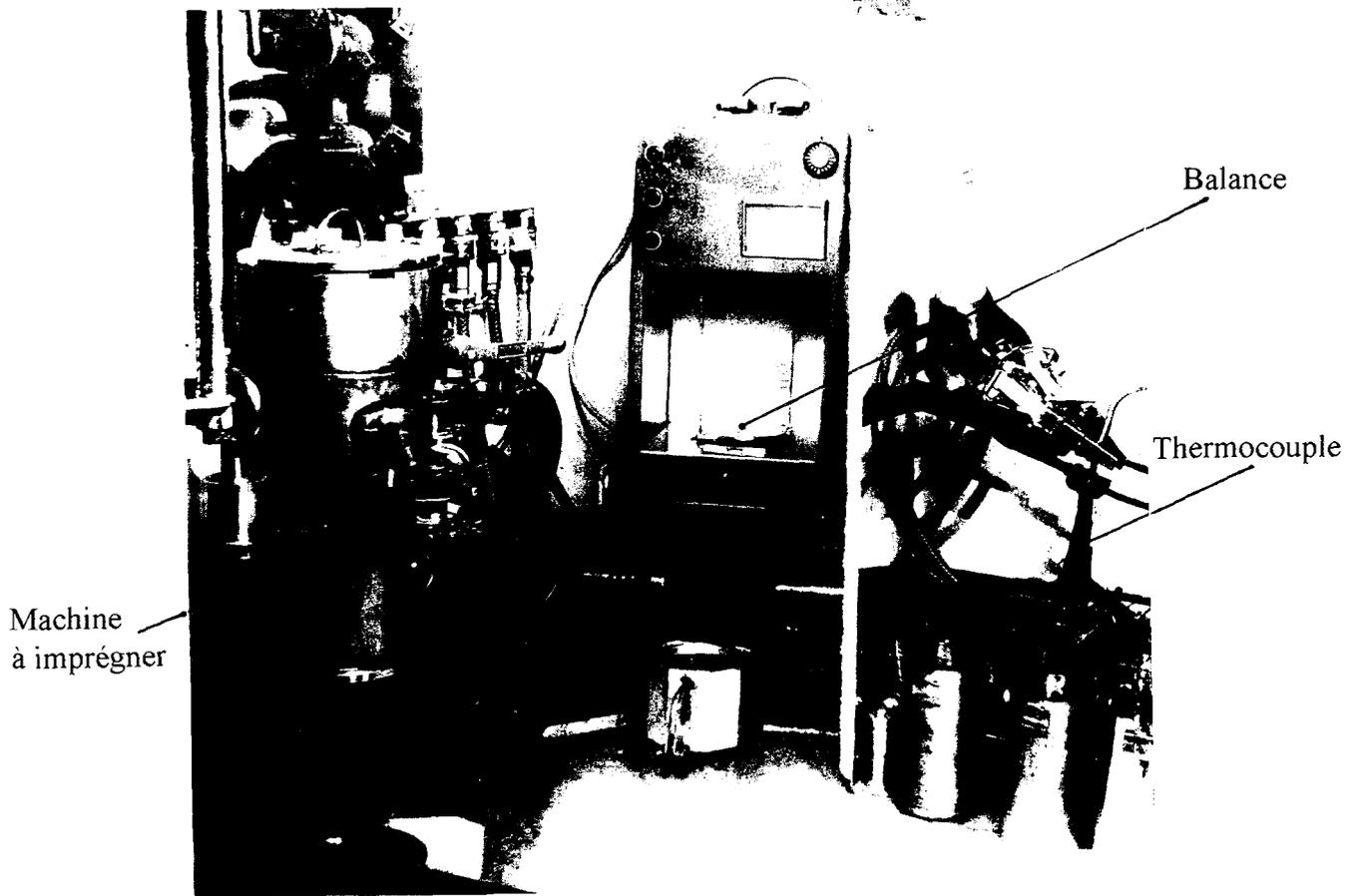


Figure 33 : Balance en cellule

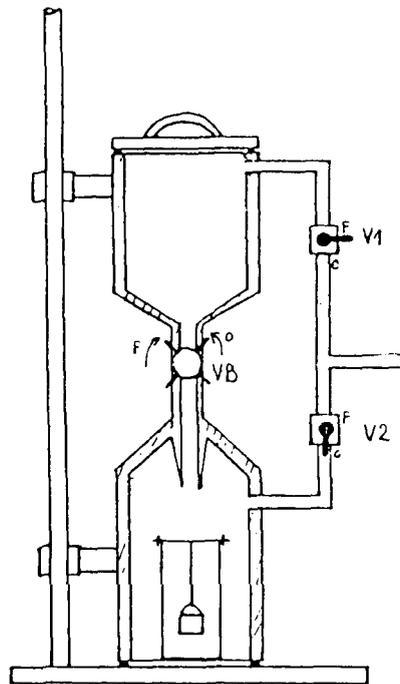


Figure 34 : Dispositif d'imprégnation sous vide

**60 minutes** 4,4% à 1545°C et 17% à 1715°C puis une **évolution plus lente** qui varie en 540 mn de 4,4% à 7,8% à 1545°C et de 17% à 30% à 1715°C.

**Elles montrent une grande dispersion des points à 1715°C.** Cette dernière a aussi été observée sur des études de relâchement à hautes températures à Grenoble [42]. Elle est attribuée à l'incertitude de mesure de  $\pm 20^\circ\text{C}$ , qui a une influence importante sur le relâchement à cette température. Cette supposition sera rediscutée par la suite.

#### II.2.4. Effet de la température

**Le relâchement thermique des gaz est activé à une température seuil d'environ 1130°C.** Le temps mis pour atteindre cette température minimale, lors de la mise en marche de l'installation, est d'environ 15s à une température de 1715°C et de 45 s à une température de 1410°C. Le relâchement des gaz de fission croît avec la température.

### II.3. Comparaison à d'autres études expérimentales

Il est difficile de comparer les fractions de gaz relâchés déterminées dans cette étude à d'autres mesures présentées dans la littérature. En effet, dans les différentes études, le volume de gaz formé par l'irradiation n'est pas déterminé par la même méthode et donc la référence des mesures n'est pas la même. Dans notre étude, le volume de gaz de fission formé, au cours de l'irradiation, a été estimé par une formule théorique (IV. 10) . K. Une et S. Kashibe ont mesuré la quantité totale de gaz restant dans l' $\text{UO}_2$  par une technique de dissolution [13]. A 300 mn, ils obtiennent un relâchement d'environ 5 % à un taux de combustion de 23 GWj/tU pour 1,4 % dans notre laboratoire à un taux de combustion légèrement supérieur.

## III. DETERMINATION DU GONFLEMENT PAR PESEE HYDROSTATIQUE

Le gonflement gazeux des échantillons d' $\text{UO}_2$  irradié (25 GWj/tU), puis traité thermiquement, a tout d'abord été déterminé par la technique de pesée hydrostatique.

On rappelle que cette technique donne l'évolution de la porosité fermée de l'échantillon, car elle ne prend pas en compte la porosité ouverte de l'échantillon.

### III.1. Dispositif expérimental

La balance et le dispositif d'imprégnation sous vide sont présentés respectivement sur la Figure 33 et la Figure 34.

### III.2. Principe

Le principe de la méthode est détaillé dans le chapitre 3. Pour cette étude, le liquide utilisé est du bromobenzène  $C_6H_5Br$ . La pesée du combustible dans l'air et dans le bromobenzène s'effectue à l'aide d'un panier, par différence entre la pesée du panier plein de combustible et celle du panier vide. Les mesures ont été réalisées conformément à la procédure propre au laboratoire [45]. Pour chaque échantillon, 3 mesures ont été effectuées.

La mesure consiste tout d'abord à peser l'échantillon dans l'air. On relève alors la température de la cellule. Puis, l'échantillon est imprégné dans le bromobenzène pendant environ 2 heures. Lorsque la température du bromobenzène est revenue à la température ambiante, on effectue alors la pesée du combustible dans le bromobenzène. La température du bromobenzène est mesurée par un thermocouple, que l'on place dans le pot de liquide immédiatement après la pesée.

Le calcul de la masse volumique à partir des pesées effectuées est le suivant [46] :

$$\rho_{uo2} = \frac{P_1 - p_1}{(P_1 - p_1) - (P_2 - p_2)} \cdot (d_1 - d_a) + d_a \quad (IV. 6)$$

- $P_1$  (g) : Poids apparent de l'échantillon + nacelle dans l'air  
 $p_1$  (g) : Poids apparent de la nacelle dans l'air  
 $P_2$  (g) : Poids apparent de l'échantillon + nacelle dans le bromobenzène  
 $p_2$  (g) : Poids apparent de la nacelle dans le bromobenzène  
 $d_1$  (g/cm<sup>3</sup>) : Densité du liquide à la température  $T_1$  du liquide  
 $d_a$  (g/cm<sup>3</sup>) : Densité de l'air à la température  $T_a$  de l'air

Cette technique permet de calculer respectivement les masses volumiques  $\rho_i$ ,  $\rho_f$ , avant et après le traitement thermique. Le gonflement est déduit par la formule (III. 1), rappelée ci-dessous :

$$G = \frac{\rho_i - \rho_f}{\rho_f \left(1 + \frac{\Delta m}{m_f}\right)}$$

Dans cette étude, la perte de masse maximale par relâchement des gaz de fission qui correspond à la température maximale et au temps maximal est égale à 0,07%.  $\Delta m/m_f$  est donc négligeable par rapport à 1. D'où ,

$$G = \frac{\rho_i - \rho_f}{\rho_f} \quad (IV. 7)$$

<b>B<sub>4</sub>C</b> <b>Masse volumique</b> <b>= 2,21 g/cm<sup>3</sup></b>	<b>Masse volumique ne prenant pas en compte</b> <b>le volume des porosités ouvertes (g/cm<sup>3</sup>)</b>	
	<b>Pesée hydrostatique</b>	<b>Pycnométrie à hélium</b>
<b>Moyenne sur 3 mesures</b>	2,51	2,49
<b>Incertitude de la mesure</b>	0,02	0,02

Tableau 7 : Comparaison des mesures effectuées par les techniques de pesée hydrostatique et de pycnométrie à hélium sur une pastille de carbure de bore

### III.3. Qualification

On peut se demander si le liquide pénètre entièrement dans la porosité ouverte de l'échantillon. On a pour cela effectué un essai comparatif sur une pastille de carbure de bore poreuse. Ce matériau a été choisi car il est poreux, et ses pores sont de taille comparable à celle des échantillons d'UO<sub>2</sub> de l'étude (diamètre des pores de l'ordre du µm). La masse volumique de la pastille de carbure de bore a été mesurée par pesée hydrostatique et par pycnométrie à hélium. Par cette deuxième technique, la masse volumique est déterminée par la variation de la pression d'un gaz, due au changement de volume d'un récipient calibré pour une quantité donnée, initialement vide puis contenant l'échantillon. Le gaz pénètre dans la porosité ouverte de l'échantillon, ce qui rend ces deux techniques comparables. Le gaz utilisé est un gaz inerte : hélium. La précision de la mesure est : ±0,02 g/cm<sup>3</sup>. Les résultats obtenus sont présentés dans le Tableau 7.

Les deux mesures sont en accord. Le bromobenzène et l'hélium ont donc rempli le même volume aux incertitudes de mesure près. Par la technique de pycnométrie à hélium, le gaz s'introduit parfaitement dans la porosité. On peut donc considérer que lors de la pesée hydrostatique, le bromobenzène pénètre entièrement dans la porosité ouverte de la pastille de carbure de bore.

### III.4. Précision de la mesure

#### III.4.1. Calcul de l'incertitude de mesure sur la masse volumique de l'UO<sub>2</sub>

Le calcul de l'incertitude est effectué sur la formule (IV. 6) qui se décompose de la façon suivante :

$$\rho_{UO_2} = A + d_a \text{ (IV. 8) avec } A = \frac{P_1 - p_1}{(P_1 - p_1) - (P_2 - p_2)} \cdot (d_l - d_a) = \frac{a}{c} \cdot b \text{ (IV. 9)}$$

Il est présenté en Annexe 2. L'incertitude de mesure sur la masse volumique obtenue est : ±0,02 g/cm<sup>3</sup>, soit une erreur relative de ±0,3%.

#### III.4.2. Calcul de l'incertitude de mesure sur le gonflement

Le gonflement est donné par la formule (IV. 7). Le calcul de la précision absolue E<sub>G</sub> de la mesure est :

$$E_G = \pm \frac{\rho_i - \rho_f}{\rho_f} \sqrt{\left(\frac{E_{\rho_f}}{\rho_f}\right)^2 + \left(\frac{\sqrt{E_{\rho_i}^2 + E_{\rho_f}^2}}{\rho_i - \rho_f}\right)^2} \quad \text{(IV. 10)}$$

G (%)	Température (°C)				
	1130	1410	1545	1630	1715
Temps (mn)					
0		0,0	0,0	0,0	0,0
5		-0,1	0,2	0,2	0,5
15					1,5
30			0,8		2
60		1,0	1,1	1,2	3
300	-0,5	1,6	2	2,1	3,9
600			2,6		4,8

Tableau 8 : Gonflement déterminé par la technique de pesée hydrostatique, en fonction du temps et de la température

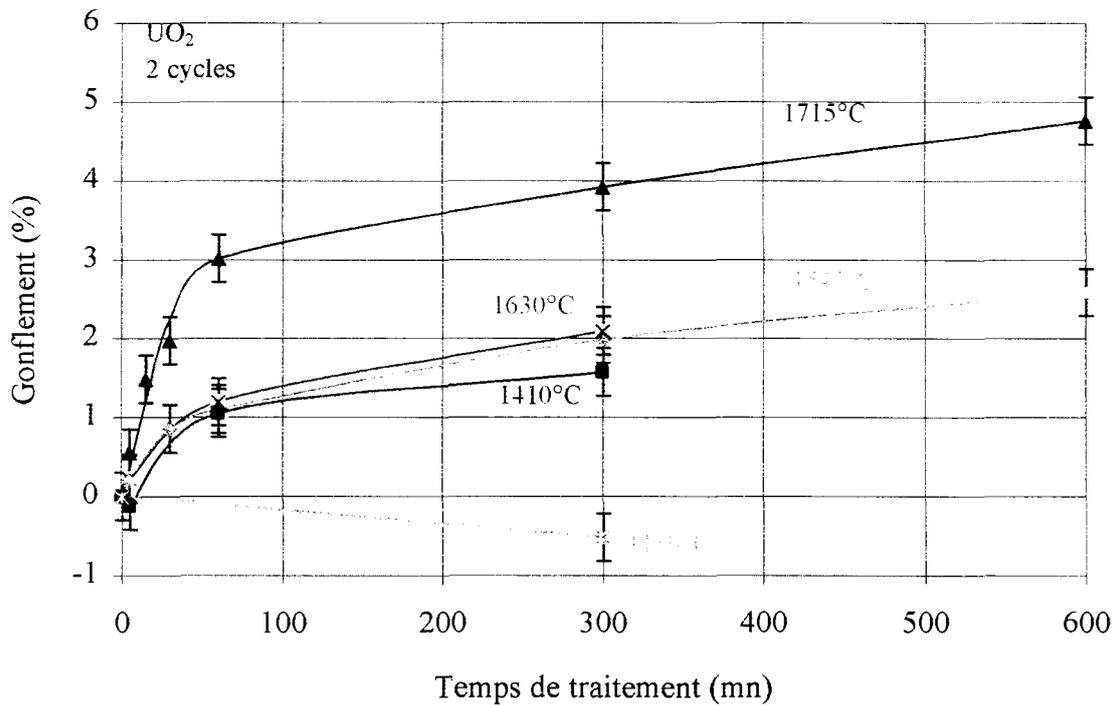


Figure 35 : Gonflement déterminé par la technique de pesée hydrostatique, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

*(ces mesures donnent la porosité fermée)*

*Incertitude absolue de mesure sur le gonflement :  $\pm 0,3\%$*

*Incertitude de mesure sur la température :  $\pm 20^\circ\text{C}$*

Il a été effectué sur tous les échantillons. L'incertitude maximale de mesure du gonflement obtenue est de  $\pm 0,3$  %.

### III.5. Résultats

A partir des mesures de masse volumique (Annexe 3), le gonflement a été calculé. Les résultats sont présentés dans le Tableau 8 et sur la Figure 35. Cette figure traduit, en fonction du temps de traitement et de la température, l'évolution de la porosité fermée qui résulte de la compétition entre le gonflement total (intragranulaire et intergranulaire) et l'ouverture de la porosité intergranulaire et de la porosité initiale.

On rappelle que cette mesure ne comptabilise plus, après le traitement thermique à haute température, une part de la porosité initiale qui s'est ouverte et qui échappe ainsi à la mesure.

A  $1130^{\circ}\text{C}$ , la mesure est négative. En fait, elle révèle que le gonflement dû à la précipitation des bulles est très faible. La mesure négative est probablement due à la dispersion expérimentale.

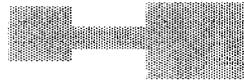
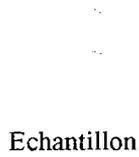
A une température supérieure, on observe un gonflement du combustible qui évolue avec le temps. Le gonflement total l'emporte donc sur l'ouverture de la porosité initiale et les réseaux de bulles fermées lors des traitements thermiques.

**L'allure des courbes de gonflement est similaire : une phase rapide de gonflement jusqu'à environ 60 mn, puis une phase plus lente.** A  $1545^{\circ}\text{C}$ , il passe de 0 à 1,1% et à  $1715^{\circ}\text{C}$ , de 0 à 3% en 60 mn puis évolue de 1,1 % à 2,6% et à  $1715^{\circ}\text{C}$  de 3% à 4,8%, pour un temps de traitement de 540 mn.

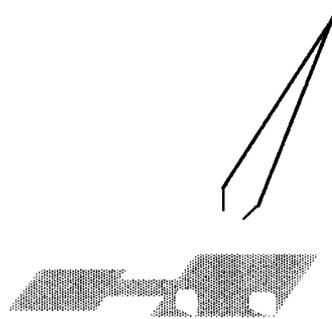
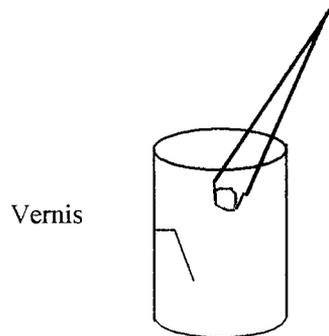
A  $1410^{\circ}\text{C}$ ,  $1545^{\circ}\text{C}$  et  $1630^{\circ}\text{C}$ , les courbes de gonflement se superposent quasiment. Elles montrent que l'effet de la température sur le gonflement total dû aux bulles de gaz de fission est masqué par l'ouverture de la porosité formée lors des traitements thermiques.

Par contre, la courbe à  $1715^{\circ}\text{C}$  se détache du lot de courbes aux températures plus basses, ce qui montre que l'effet de la température est plus important sur le gonflement que sur l'ouverture de la porosité fermée. **Le détachement peut être expliqué par le gonflement intragranulaire qui, à cette température, devient important et introduit une composante supplémentaire.**

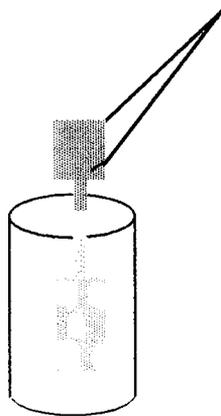
### 1. Pesée dans l'air



### 2. Collage des échantillons sur une plaque



### 3. Trempes des échantillons



### 4. Pesée de l'ensemble

Figure 36 : Procédure expérimentale de pesée hydrostatique avec vernissage

#### IV. DETERMINATION DU GONFLEMENT PAR PESEE HYDROSTATIQUE AVEC VERNISSAGE

Le gonflement a ensuite été étudié par une technique dérivée de celle présentée précédemment. Par cette méthode, on a pu prendre en compte, à la fois, la porosité fermée et le porosité ouverte.

##### IV.1. Principe

Pour éviter la pénétration du liquide dans la porosité ouverte de l'échantillon, on tente d'obturer les trous sans les remplir. Pour cela, on a recours à un vernissage préalable des échantillons d'UO<sub>2</sub>.

Pour pouvoir effectuer la manipulation en cellule avec les télémanipulateurs, il a fallu utiliser une plaque de cuivre comme support, sur laquelle on vient coller les morceaux d'UO<sub>2</sub>. Cette opération ajoute une incertitude sur la mesure lors des pesées, mais s'est avérée indispensable pour la manipulation des échantillons.

Avant le collage, la plaque de cuivre utilisée et l'échantillon d'UO<sub>2</sub> sont pesés séparément. Les morceaux d'UO<sub>2</sub> sont ensuite collés par du vernis sur la plaque, puis on trempe l'ensemble dans un bain de vernis (Figure 36). La pesée avant et après vernissage donne la masse de vernis ajoutée, soit en connaissant sa masse volumique, le volume de vernis ajouté.

La masse volumique totale (Cuivre + vernis + UO<sub>2</sub>) est déterminée par la technique de pesée hydrostatique, présentée précédemment. Au volume total de l'échantillon, on soustrait le volume de vernis et le volume de la plaque de cuivre, ce qui donne le volume de l'échantillon. Connaissant la masse de l'UO<sub>2</sub>, on détermine donc sa masse volumique par la formule :

$$\rho_{uo2} = \frac{m_{uo2}}{\left(\frac{m_{cu} + \text{vernis} + uo2}{\rho_t}\right) - \left(\frac{m_{cu}}{\rho_{cu}}\right) - \left(\frac{m_{cu} + \text{vernis} + uo2 - m_{cu} - m_{uo2}}{\rho_{vernis}}\right)} \quad (IV. 11)$$

$m_{cu + \text{vernis} + uo2}(\text{g})$ :	Masse de la plaque de cuivre+vernis+UO <sub>2</sub>
$m_{cu}(\text{g})$	: Masse de la plaque de cuivre
$m_{uo2}(\text{g})$	: Masse de l'échantillon d'UO <sub>2</sub>
$\rho_{cu}(\text{g/cm}^3)$	: Masse volumique du cuivre
$\rho_t(\text{g/cm}^3)$	: Masse volumique totale (plaque de cuivre + vernis+UO <sub>2</sub> ) déterminée par pesée hydrostatique

	<b>Masse volumique (g/cm<sup>3</sup>)</b>	<b>Incertitude de la mesure (g/cm<sup>3</sup>)</b>
<b>Pesée dans le bromobenzène</b>	1,22	± 0,01
<b>Pesée dans l'eau</b>	1,26	± 0,02

Tableau 9 : Comparaison de la masse volumique du vernis par pesée hydrostatique dans l'eau et dans le bromobenzène

Cette technique permet de calculer respectivement les masses volumiques avant et après traitement thermique. Le gonflement se déduit comme précédemment par la formule (IV. 2).

## IV.2. Qualification

La qualification consiste à déterminer la masse volumique du vernis, puis à appliquer la méthode à des échantillons d'UO<sub>2</sub>, de masse géométrique connue.

### IV.2.1. Détermination de la masse volumique du vernis

Le vernis est composé d'une résine d'acrylique (vernis), d'un composé cétonique (solvant), de diphtalate de butyl (plastifiant) et de diméthyl éther (propulseur).

#### a) Masse volumique du vernis

Pour déterminer la masse volumique du vernis sec, on a procédé comme suit : une plaque de cuivre de masse connue a été recouverte de vernis. La masse volumique de l'ensemble (vernis et plaque de cuivre) a été mesurée par la technique de pesée hydrostatique. On en a déduit la masse volumique du vernis par la formule ci-dessous :

$$\rho_{\text{vernis}} = \frac{m_{\text{cu} + \text{vernis}} - m_{\text{cu}}}{\left( \frac{m_{\text{cu} + \text{vernis}}}{\rho_t} \right) - \left( \frac{m_{\text{cu}}}{\rho_{\text{cu}}} \right)}$$

où,

$m_{\text{cu}+\text{vernis}}$  (g) : Masse de la plaque de cuivre+vernis

$m_{\text{cu}}$  (g) : Masse du cuivre

$\rho_{\text{cu}}$  (g/cm<sup>3</sup>) : Masse volumique du cuivre

$\rho_t$  (g/cm<sup>3</sup>) : Masse volumique totale (plaque de cuivre + vernis)

Deux liquides ont été utilisés pour les pesées hydrostatiques : du bromobenzène qui est le liquide couramment utilisé dans notre laboratoire et de l'eau. Dix mesures ont été effectuées dans chaque liquide. Les moyennes des mesures sont présentées dans le Tableau 9. La différence entre les deux mesures de la masse volumique est supérieure à l'incertitude déterminée. On s'est alors interrogé sur la compatibilité chimique du vernis et du liquide de pesée.

	<b>Eau</b>	<b>Bromobenzène</b>
<b>Prise de masse (g) en 30 mn</b>	$2.10^{-4}$	$1,3.10^{-3}$
<i>(la durée d'une mesure est d'environ 30 mn)</i>		

Tableau 10 : Compatibilité chimique du vernis et du liquide de pesée

	<b>Masse volumique (g/cm<sup>3</sup>)</b>
<b>Pesée dans le bromobenzène</b>	9,73
<b>Pesée dans l'eau</b>	9,74

Tableau 11 : Comparaison des mesures effectuées sur des morceaux d'UO<sub>2</sub> par pesée hydrostatique avec vernissage dans l'eau et dans le bromobenzène

<b>Lot 1</b>	<b>Masse volumique (g/cm<sup>3</sup>)</b>
<b>Pesée hydrostatique avec vernissage</b>	9,76
<b>Mesure géométrique</b>	10,25
<b>Erreur relative / pesée hydrostatique</b>	5 %

<b>Lot 2</b>	<b>Masse volumique (g/cm<sup>3</sup>)</b>
<b>Pesée hydrostatique avec vernissage</b>	9,74
<b>Mesure géométrique</b>	10,23
<b>Erreur relative / pesée hydrostatique</b>	5 %

Tableau 12 : Comparaison des masses volumiques déterminées par pesée hydrostatique avec vernissage et par une mesure géométrique sur des fragments de combustible UO<sub>2</sub>

b) *Compatibilité chimique du vernis et du liquide de pesée*

Pour cela, on a suivi l'évolution de la masse de l'échantillon (Plaque de cuivre + vernis) par pesée dans ces deux liquides différents.

Le Tableau 10 montre une prise de masse en 30 mn (temps d'une pesée) plus élevée dans le bromobenzène que dans l'eau. Cela traduit probablement une interaction chimique ou physico-chimique du vernis et du bromobenzène. Cette observation explique les différences de masse volumique dans l'eau et dans le bromobenzène. Toutefois, on a tenté de préciser l'influence du liquide sur la mesure en déterminant la masse volumique de morceaux de combustible. Les résultats présentés dans le Tableau 11, obtenus dans l'eau et dans le bromobenzène, sont identiques à l'incertitude de mesure près. Le liquide retenu par la suite est le bromobenzène.

On remarque, cependant, que l'eau est plus délicate à utiliser que le bromobenzène. En effet, lors de la mise en pesée dans le liquide, si les éléments supérieurs du panier sont mouillées lors de la manipulation, la mesure est faussée, ce qui n'est pas le cas avec le bromobenzène, compte tenu de sa rapidité d'évaporation.

## IV.2.2. Application de la méthode à des échantillons d'oxyde d'uranium de masse volumique géométrique connue

La technique a été testée sur des morceaux de pastille d' $\text{UO}_2$  vierge que l'on a fragmentée après avoir mesuré la masse volumique géométrique préalablement sur la pastille entière. L'essai a été mené sur deux lots différents de morceaux.

Les mesures effectuées sur des fragments de combustible (Tableau 12) montrent un écart de 5% par rapport à la mesure de la masse géométrique considérée comme la référence. Le volume des échantillons vernis est donc surestimé.

Toutes les mesures effectuées montrent une majoration du volume pris en compte. L'erreur commise est toujours dans le même sens. C'est donc une erreur systématique.

On a ensuite appliqué la méthode à un de nos échantillons d' $\text{UO}_2$  irradié pendant 2 cycles. Sur cet échantillon non traité thermiquement, on sait que, en s'appuyant sur l'expérience que le laboratoire a acquis sur des échantillons comparables, la porosité ouverte est très faible. La mesure par la technique classique de pesée hydrostatique convient donc pour déterminer la masse volumique de cet échantillon et peut servir de référence pour évaluer la méthode avec vernissage. La mesure obtenue par pesée hydrostatique avec vernissage de l'échantillon a été corrigée de 5% puis comparée dans le Tableau 13 à la

UO <sub>2</sub> - 2 cycles	Masse vol. (g/cm <sup>3</sup> )
Pesée hydrostatique avec vernissage	9,82
Pesée hydrostatique avec vernissage corrigée de 5%	10,31
Pesée hydrostatique de référence	10,39
Erreur relative	0,8%

Tableau 13 : Comparaison de la mesure de la masse volumique déterminée par pesée hydrostatique et de celle obtenue par pesée hydrostatique avec vernissage, corrigée de 5%, sur un échantillon d'UO<sub>2</sub> 2 cycles

UO <sub>2</sub> 2 cycles traité thermiquement	Masse volumique (g/cm <sup>3</sup> )
Mesure 1	9,3
Mesure 2	9,38
Mesure 3	9,37
Mesure 4	8,5
Mesure 5	9,41
Mesure 6	9,34
Moyenne	9,36 ± 0,04

Tableau 14 : Reproductibilité de la mesure

mesure par la pesée hydrostatique classique sur des morceaux du même lot. La différence entre les deux mesures, de 0,8%, est très faible, ce qui confirme que l'écart par rapport à la mesure vraie de référence est systématique et constante et donc que la technique est applicable.

Des essais supplémentaires ont alors été effectués pour expliquer cette différence de 5%. Aucun n'a donné de résultats concluants.

Un essai de reproductibilité a enfin été lancé sur un même échantillon. Pour cela, six mesures successives ont été effectuées sur un même échantillon. Après chaque mesure, la couche de vernis a été dissoute dans un solvant. La pesée de l'échantillon initiale et celle après disparition du vernis restent quasiment constantes. Cela prouve que tout le vernis a correctement été enlevé entre deux mesures consécutives. Les résultats sont présentés dans le Tableau 14. Les mesures sont reproductibles. Sur six mesures, cinq donnent une moyenne de  $9,36 \text{ g/cm}^3 \pm 0,04$ . Une mesure s'écarte notablement pour des raisons non identifiées.

Cette technique, qui s'est révélée intéressante sur certains points (écart quasiment constant - reproductibilité de la mesure), a été appliquée à nos échantillons. Cependant, puisqu'on n'a pas pu expliquer l'écart de 5%, elle a été appliquée uniquement à titre d'estimation du gonflement total et devra être utilisée avec grande précaution.

### IV.3. Précision de la mesure

#### IV.3.1. Calcul de l'incertitude de mesure sur la masse volumique de l' $\text{UO}_2$

La mesure débute par la détermination de la masse volumique totale  $\rho_t$  de l'échantillon d'après la formule (IV. 6) qui se décompose (IV. 8) et (IV. 9). L'incertitude absolue de la mesure (Annexe 4a), est de  $\pm 3 \cdot 10^{-2} \text{ g/cm}^3$ .

On obtient la masse volumique de l' $\text{UO}_2$  par l'équation (IV. 11). Le calcul présenté en Annexe 4b sur l'échantillon témoin est pessimiste. On retiendra donc une incertitude de mesure de  $\pm 0,12 \text{ g/cm}^3$ , soit une incertitude relative de 1,2% à  $1\sigma$  (correspondant à l'écart quadratique moyen).

Il faut ensuite prendre en compte l'incertitude de 0,8% observée après la correction de 5% de la mesure.

L'incertitude globale est donc :

$$\sqrt{1,2^2 + 0,8^2} = 1,4\%$$

G(%)	Température(°C)			
Temps (mn)	1410	1545	1630	1715
0	0,0	0,0	0,0	0,0
5	0,8	3,6	5,0	4,2
15				9,9
30				11,5
60	5,6	4,0	7,0	12,9
300	3,6	5,6	8,3	13,6
600		7,2		14,3

Tableau 15 : Gonflement estimé par la technique de pesée hydrostatique avec vernissage en fonction du temps et de la température

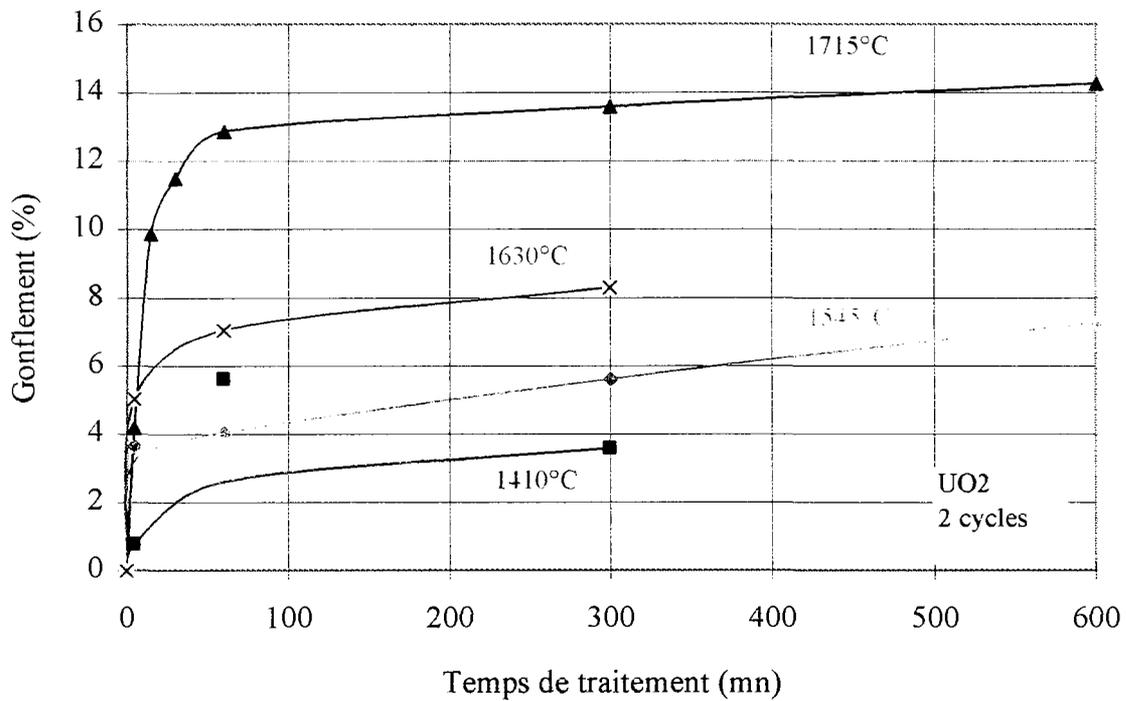


Figure 37 : Gonflement estimé par la technique de pesée hydrostatique avec vernissage en fonction du temps de traitement pour différentes températures

(ces mesures donnent une estimation de la porosité totale, ouverte et fermée)

*Incertitude absolue de mesure sur le gonflement :  $\pm 2\%$*

*Incertitude de mesure sur la température :  $\pm 20^\circ\text{C}$*

### IV.3.2. Calcul de l'incertitude de mesure sur le gonflement

Le calcul d'incertitude sur la mesure du gonflement est donné par l'expression (V. 10). Il est calculé en Annexe 4c pour un traitement de 1410°C pendant 5 heures et en Annexe 4d pour un traitement de 1715°C pendant 10 heures. La précision absolue de la mesure du gonflement est comprise entre de  $\pm 1,6\%$  et  $2\%$  soit une incertitude relative de 51% à 11%. L'incertitude considérable obtenue s'explique par le nombre élevé de manipulations. En outre, dans ce calcul, nous avons fait l'hypothèse que ces erreurs sont indépendantes ce qui majore certainement l'erreur.

## IV.4. Résultats

A partir des mesures de la masse volumique (Annexe 5), le gonflement a été calculé (Tableau 15 et Figure 37). Ce gonflement, dit total, prend en compte dans sa mesure, à la fois, la partie relative aux bulles de gaz de fission et éventuellement un gonflement, dû à l'apparition de nouvelles fissures, lors du traitement thermique.

On observe une allure, dans le temps, identique pour chaque température : **une phase rapide jusqu'à environ 60 mn, puis une évolution plus lente**. A 1545°C, il passe de 0 à 4,3% et à 1715°C, de 0 à 13,2% en 60 mn puis évolue de 4,3% à 7,6% et à 1715°C de 13,2% à 14,6%, pour un temps de traitement de 540 mn.

### **Plus la température est élevée, plus le gonflement est important.**

Par comparaison avec les résultats qui ne prennent pas en compte la porosité ouverte, obtenus par pesée hydrostatique (Figure 35), les valeurs obtenues par pesée hydrostatique avec vernissage sont notablement plus élevées. Par exemple, à 1715°C-300mn, le gonflement total (avec la porosité ouverte) est de 13% environ alors que la valeur obtenue par pesée hydrostatique (sans la porosité ouverte) n'est que de 4%. D'ailleurs, cet effet est d'autant plus marqué que le gonflement est plus fort c'est à dire que la porosité ouverte est plus importante.

## V. DETERMINATION DU GONFLEMENT PAR ANALYSE D'IMAGES

### V.1. Dispositif expérimental

#### V.1.1. Le Microscope Electronique à Balayage (M.E.B.)

La microscopie électronique à balayage consiste à balayer une zone du matériau par un faisceau d'électrons incidents et à en capter les électrons secondaires, rétrodiffusés et les

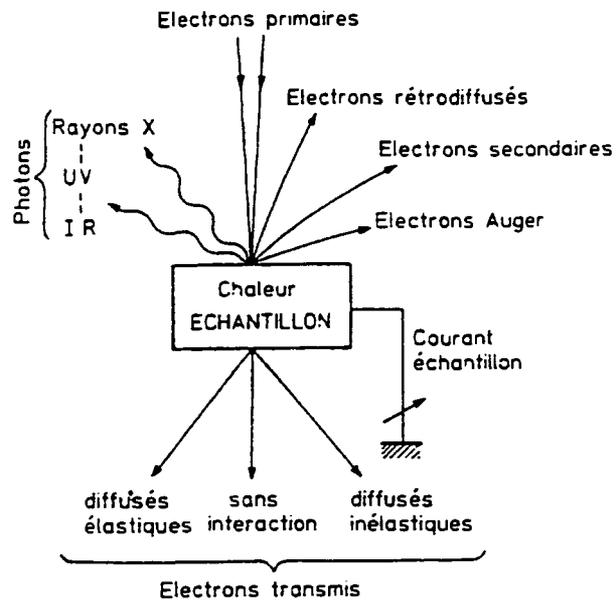


Figure 38 : Ensemble des signaux émis à partir d'une sonde électronique

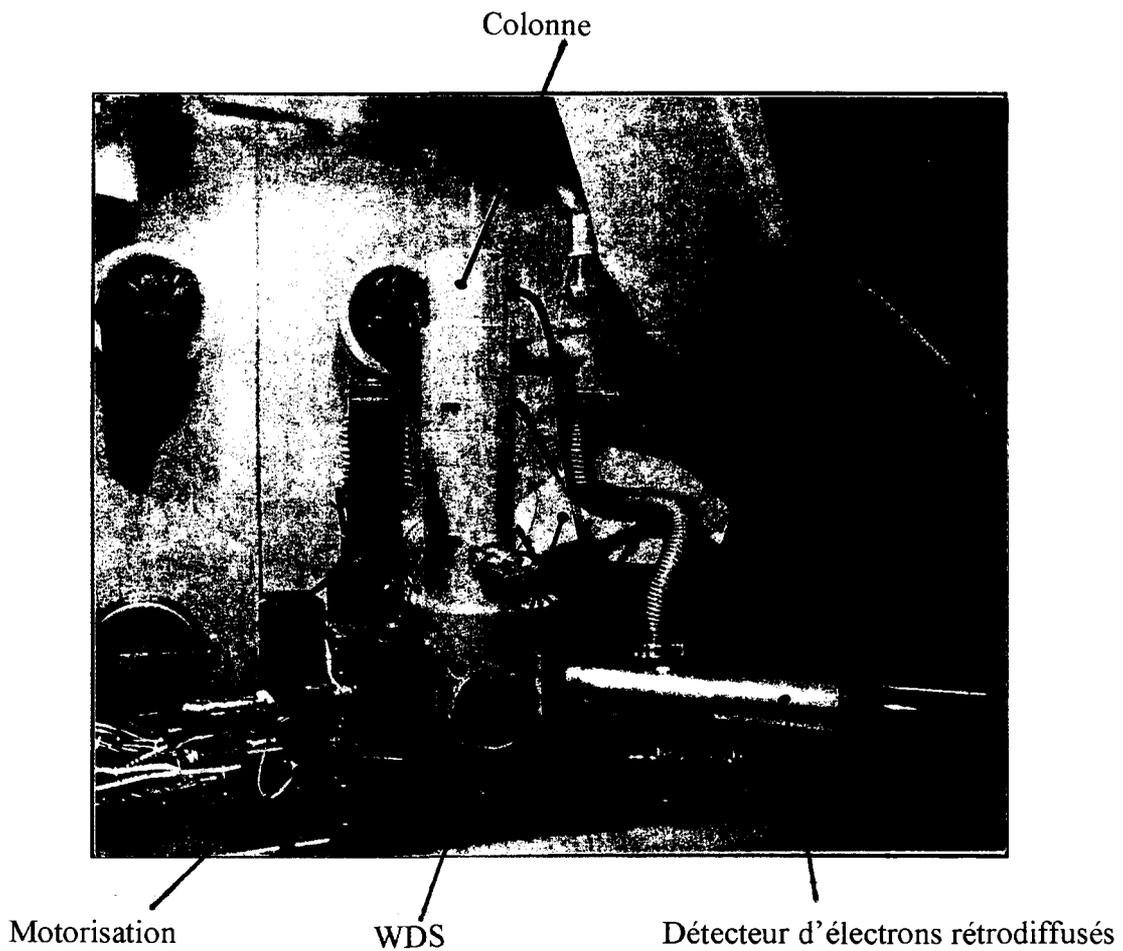
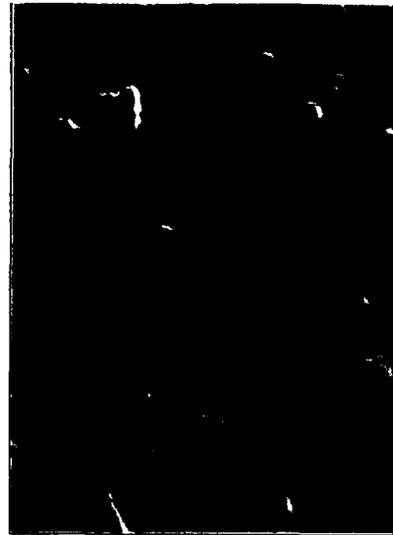


Figure 39 : M.E.B. et ses équipements



A



B

10  $\mu\text{m}$

Figure 40 : Micrographies au M.E.B. d'un combustible  $\text{UO}_2$  en mode secondaire (photo A) et en mode rétrodiffusé (photo B)

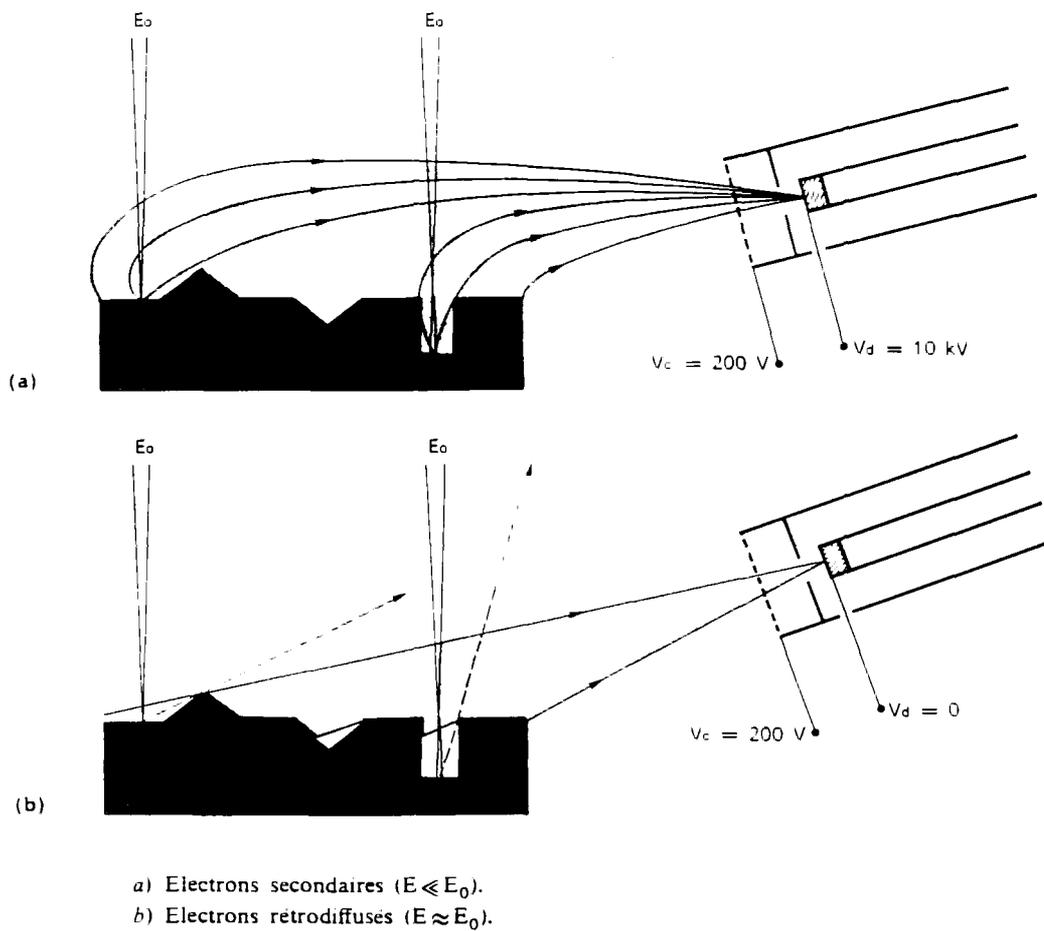


Figure 41 : Modes de fonctionnement du détecteur d'électrons rétrodiffusés et secondaires

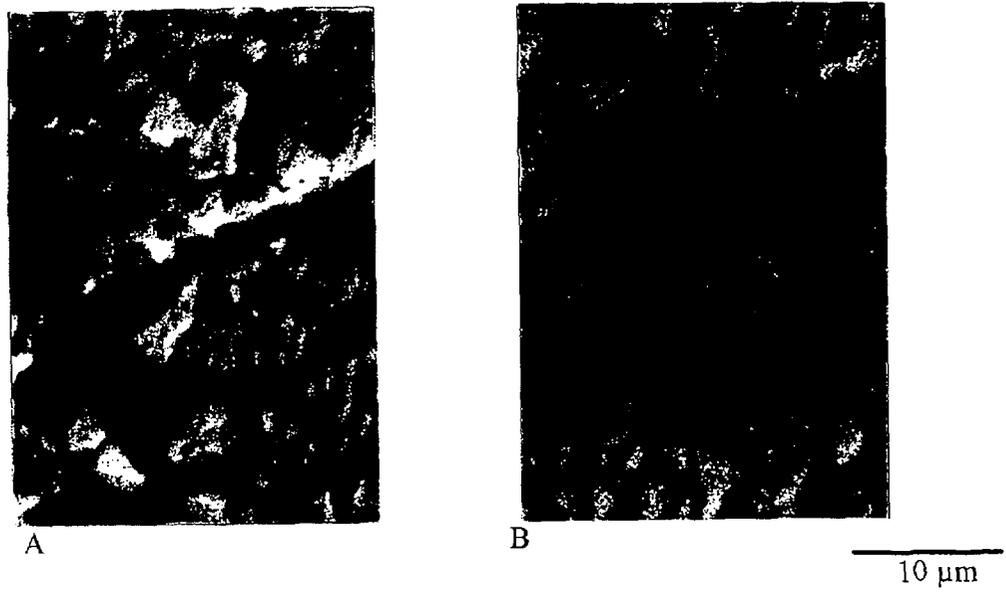


Figure 42 : Comparaison de l'observation d'un échantillon d'étain sans (photo A) et avec une source irradiante (photo B)

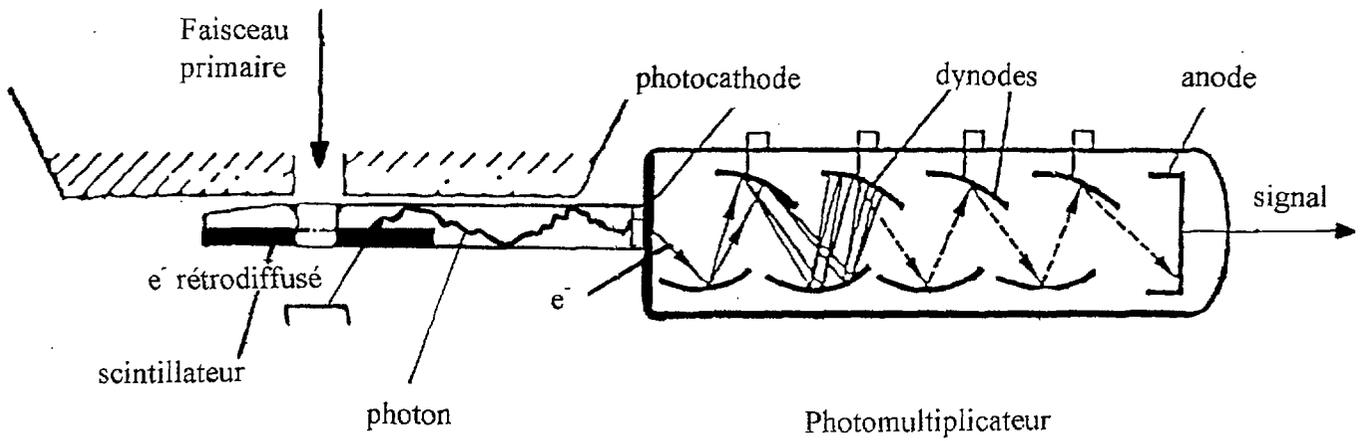


Figure 43 : Principe de fonctionnement du détecteur d'électrons rétrodiffusés

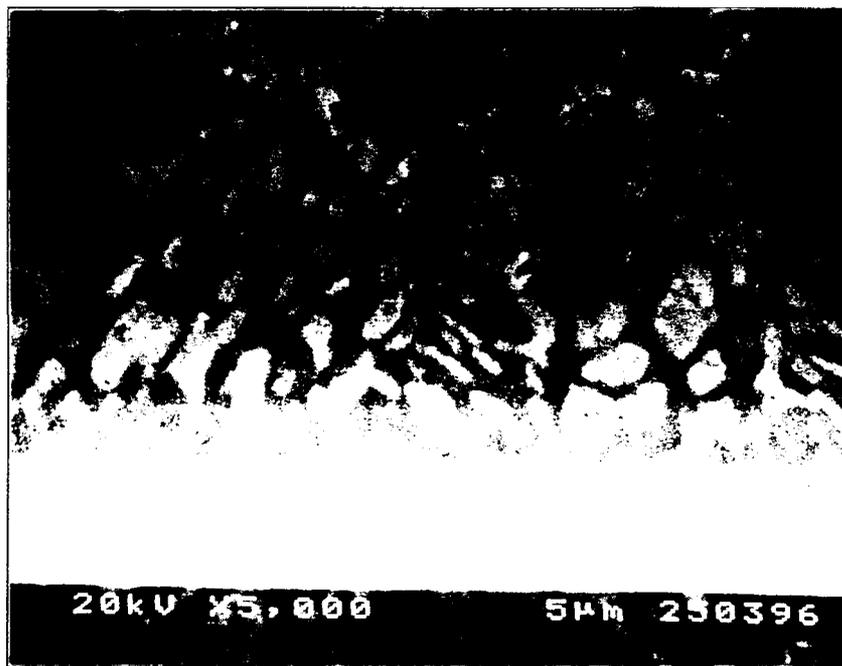
rayonnements X réémis (Figure 38). Les électrons détectés donnent des images de la zone étudiée. Les rayonnements X permettent d'y identifier les éléments présents.

Le M.E.B. (Figure 39) est un modèle JEOL JSM 5400. Installé en cellule blindée, il est utilisé pour l'observation d'échantillons radioactifs. Il est équipé d'un détecteur d'électrons secondaires, d'un détecteur d'électrons rétrodiffusés de type ROBINSON et d'un spectromètre à dispersion de longueur d'onde pour les rayonnements X (WDS). Le détecteur d'électrons secondaires est protégé des rayonnements par un blindage à base de tungstène et d'une épaisseur de 20 mm. Il donne une information topographique. Sa résolution, qui dépend peu de l'activité des échantillons, est de 10 nm. Le détecteur d'électrons rétrodiffusés est rétractable et lorsqu'il est en position sorti, se situe au centre de la chambre du M.E.B., au dessus de l'échantillon. Il n'est pas blindé. Il donne une information sur les contrastes de phase. Sa résolution est très dépendante de l'activité des échantillons. Pour une activité de 10 rad/h, sa résolution est de 0,1  $\mu\text{m}$ .

La Figure 40 présente deux micrographies d'une même zone d'une section de combustible  $\text{UO}_2$  : l'une est en mode secondaire (photo A), l'autre en mode rétrodiffusé (photo B). Le contraste de la porosité par rapport à la matrice  $\text{UO}_2$  est plus marqué sur la photo B que sur la photo A. La différence vient de la nature des signaux réémis par le matériau (Figure 41). Les électrons secondaires ont une énergie notablement plus faible que les électrons rétrodiffusés. Leur trajectoire sera donc influencée par les champs électromagnétiques. Dans ces conditions, très peu d'électrons rétrodiffusés réémis au fond d'un trou peuvent sortir de celui-ci, ce qui n'est pas le cas des électrons secondaires. Cela se traduit par une chute du signal rétrodiffusé réémis lorsque le faisceau passe sur un trou et donc une variation du contraste de l'image en ce point. Le détecteur d'électrons rétrodiffusés est donc le plus adapté à la mesure de la porosité dans un matériau.

#### V.1.2. Analyseur d'images

Le microscope électronique à balayage est couplé avec un analyseur d'images constitué d'un ordinateur compatible P.C., d'une carte d'acquisition permettant de former des images de 626x479 pixels codés sur 8 bits (256 niveaux de gris). Ces images ont des pixels disposés selon une maille carrée. L'ordinateur dispose de 20 Mo de mémoire vive et d'un disque dur de capacité 210 Mo. Les images peuvent également être stockées sur des disques optiques de 128 Mo. L'ordinateur permet de commander le déplacement de la platine X, Y du M.E.B. mais n'agit pas sur la mise au point et les autres réglages du



A

5 µm

Figure 44 : Image M.E.B. d'un échantillon d'étain obtenue en déplaçant une source radioactive le long du détecteur d'électrons rétrodiffusés

microscope. Le logiciel de traitement d'images est OPTIMAS de la société IMASYS. Il fonctionne sous Windows et dispose d'outils de traitement et d'analyse d'images.

## V.2. Préparation des échantillons

### V.2.1. Problèmes posés par l'irradiation

Le détecteur d'électrons rétrodiffusés est très sensible aux rayonnements. Lors de l'examen d'un échantillon radioactif, les performances du M.E.B. sont très diminuées. L'image perd en contraste et en résolution. L'influence du rayonnement a été mise en évidence en analysant un échantillon d'étain avec et sans source irradiante. La Figure 42 montre la différence de contraste, avec et sans source, lors d'un réglage classique. Le rayonnement perturbant a été isolé en étudiant l'influence d'une source radioactive recouverte de 2 mm d'acier, qui arrête les particules  $\alpha$  et  $\beta$  et qui ne laisse passer que le rayonnement  $\gamma$ . L'image obtenue est toujours très perturbée, montrant que le détecteur est très sensible au rayonnement  $\gamma$ .

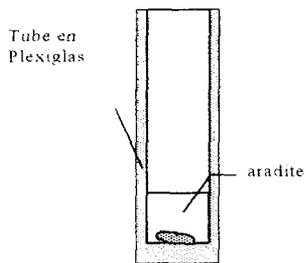
Pour apporter une solution à ce problème, on a identifié l'élément sensible du détecteur. Le principe de fonctionnement du détecteur d'électrons rétrodiffusés est présenté sur la Figure 43. L'électron rétrodiffusé est transformé en photon au niveau du scintillateur qui par réflexions multiples dans un guide de lumière, arrive à la photocathode, où il crée un électron. Ce dernier est transmis dans le photomultiplicateur par réflexions sur les dynodes à une anode où il génère un signal. Pour identifier la partie la plus sensible au rayonnement, une source radioactive a été déplacée le long du détecteur. La réponse obtenue en balayage lent de l'image est présentée sur la Figure 44. Lorsque l'on se rapproche du photomultiplicateur, le signal devient bruité et se sature. Le rayonnement  $\gamma$  perturbe donc la photocathode du photomultiplicateur en y générant des électrons.

Pour compenser cette perte d'information, deux solutions ont été appliquées :

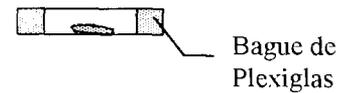
- la première solution consiste à augmenter le signal d'électrons captés. Pour cela, on augmente, soit la taille du diaphragme, soit la taille du spot du faisceau incident d'électrons du M.E.B. en jouant sur les lentilles du condenseur. Ces adaptations ont, pour conséquence, de diminuer considérablement la résolution du M.E.B. Le réglage définitif est donc un compromis entre le contraste et la résolution.

- la seconde solution est de diminuer le bruit dû à l'irradiation. Or, la protection du détecteur est irréalisable. En effet, le photomultiplicateur, qui est la partie la plus sensible du détecteur, est rétractable de telle sorte qu'il peut difficilement être blindé.

1. Imprégnation sous vide  
d'un fragment de combustible  
(non traité ou traité thermiquement)



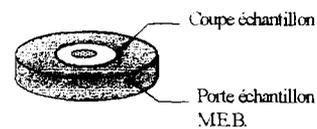
2. Coupe de l'échantillon



3. Démoulage



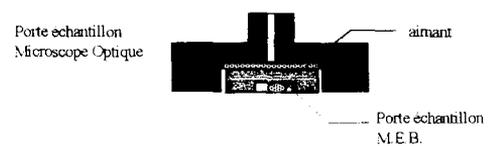
4. Enrobage dans un porte échantillon M.E.B.



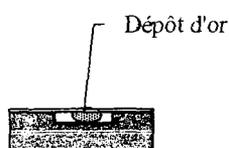
5. Polissage

Papiers 400  $\rightarrow$  800  
Draps avec pâtes diamantées  $\rightarrow$   $8\mu\text{m}$   $\rightarrow$   $2\mu\text{m}$   
Finition sur feutre ras  $\rightarrow$   $1\mu\text{m}$  (qqz min.)

6. Observations au microscope optique



7. Dépôt d'or



8. Observations au M.E.B.

Figure 45 : Préparation métallographique des échantillons

La seule alternative est donc de diminuer la taille de l'échantillon pour réduire le rayonnement. Pour cela, nous n'introduisons qu'un seul fragment d'échantillons (2 à 3 mm de diamètre) de combustible sur la platine du M.E.B.. Cette opération a permis de diminuer l'activité des échantillons initialement de 100 rad/h à 10 rad/h. On améliore ainsi nettement le contraste et la résolution du M.E.B..

### V.2.2. Préparation métallographique

Un seul morceau de combustible de chaque échantillon est imprégné dans de l'araldite sous vide et placé dans un tube en Plexiglas. L'ensemble est coupé sous eau sur une tronçonneuse. On ôte d'abord la bague de Plexiglas (qui perturbe l'écoulement des charges). L'échantillon est ensuite enrobé dans un moule, puis prépoli sous eau sur papiers abrasifs de grade 240, 400, 600, pendant quelques minutes, sur feutres hyprocél avec pâtes diamantées de granulométrie 8  $\mu\text{m}$  et 2  $\mu\text{m}$  pendant 20 minutes. Enfin, on utilise sur feutre ras avec une solution de granulométrie de 1  $\mu\text{m}$  pendant 1 minute. L'état de surface de l'échantillon est alors vérifié au microscope optique. Il est ensuite préparé pour le M.E.B.. Pour cela, l'échantillon est tout d'abord décontaminé par trois bains successifs dans un bac à ultrasons. Puis, un dépôt d'or est effectué pour rendre conducteur l'échantillon imprégné dans de l'araldite. L'ensemble des opérations effectuées au cours de la préparation des échantillons est présenté en Figure 45.

L'ensemble de ces opérations s'effectue en cellule blindée à l'aide de télémanipulateurs qui compliquent la manipulation. La préparation de quatre échantillons, de la coupe au dépôt d'or, prend environ quinze jours.

### V.2.3. Problèmes introduits par le polissage

Le polissage des échantillons peut introduire une erreur assez importante dans la mesure. Obtenir une surface plane et parfaitement polie du matériau poreux est quasiment impossible. En effet, l'araldite a une dureté plus faible que le matériau. Au cours du polissage, elle se creusera plus que le matériau. Le fait d'enrober sous vide limite en partie les arrachements car l'araldite pénètre dans la porosité ouverte. Cependant cela ne supprime pas tous les biais liés à la préparation. Le tronçonnage et le polissage provoquent des arrachements de grains soit dans la matrice, soit sur les contours des pores. L'arrachage des grains ayant une taille équivalente à la porosité initiale du matériau de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$  va introduire une erreur sur la mesure. Nous verrons plus loin comment la mesure a été développée de façon à minimiser ce problème.

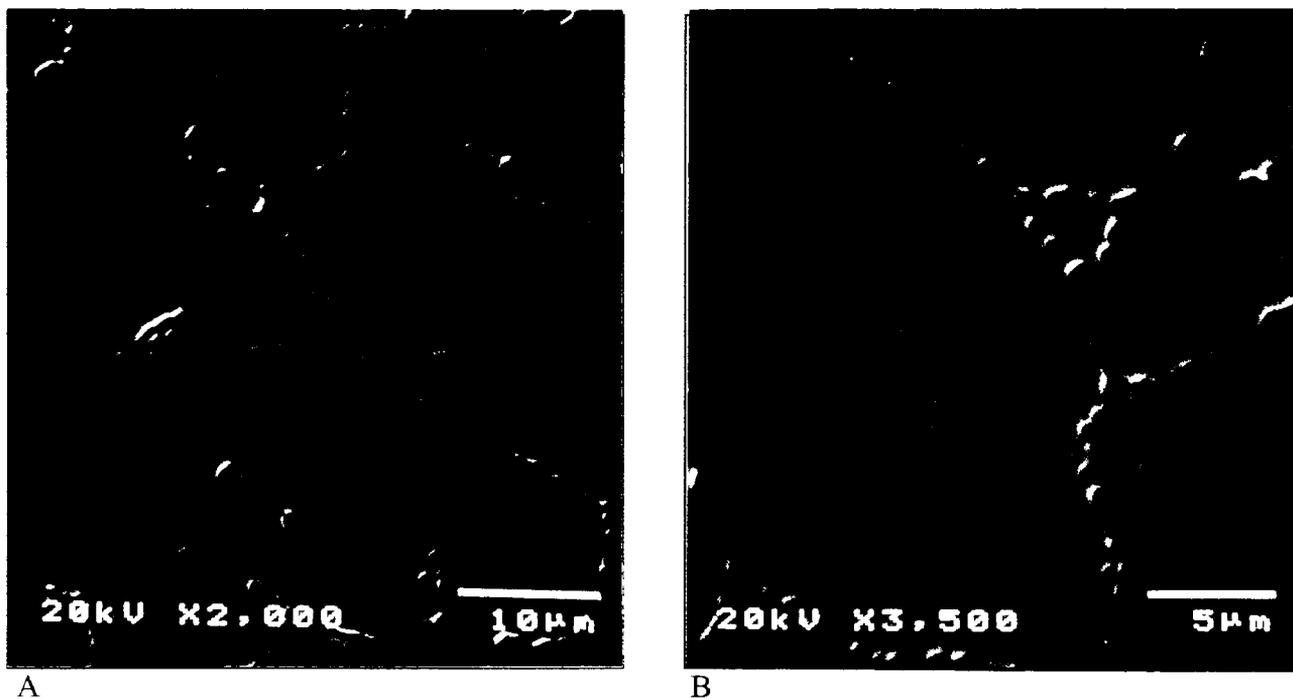


Figure 46 : Images en mode rétrodiffusé d'un échantillon d' $\text{UO}_2$  ayant fonctionné pendant 2 cycles et traité à  $1545^\circ\text{C}$  - 1 heure

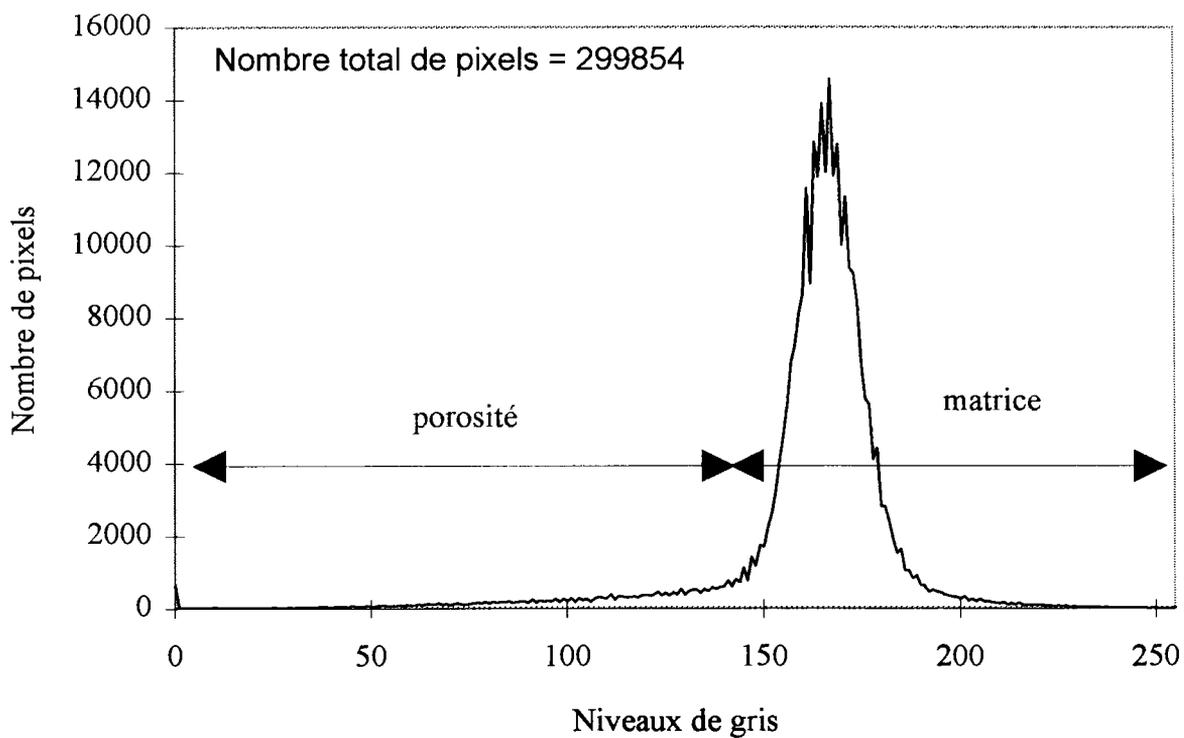


Figure 47 : Histogramme d'une image sur 256 niveaux de gris

### V.3. Qualification de la mesure

#### V.3.1. Acquisition des images en niveaux de gris

##### a) *Images en niveaux de gris*

Les images en niveaux de gris observées au M.E.B. en mode rétrodiffusé (Figure 46), sont constituées de pores noirs sur un fond gris qui correspond à la matrice d'UO<sub>2</sub>. L'histogramme en niveaux de gris, associé à ces images (Figure 47), montre un pic très important dans les gris de la matrice de l'échantillon. Le pic, lié à la porosité, n'est pratiquement pas visible à cause de la faible teneur en porosité (la surface des pics est proportionnelle à la teneur de chaque phase). A cause des problèmes liés au système d'acquisition, il existe une gamme de gris qui appartient à la porosité. La détection des pores sera donc un point délicat dans notre analyse et il pourra s'ensuivre une erreur non négligeable pour la mesure de leur surface.

##### b) *Paramètres d'acquisition*

En analyse d'images, le matériau tout entier n'est pas accessible à la mesure. Cette contrainte oblige l'expérimentateur à limiter son étude à une fenêtre de taille réduite du matériau. Il reste à déterminer la surface minimale représentative de l'ensemble de la section, qui est fonction du nombre de champs et du grandissement choisi.

#### (1) Echantillonnage

Par échantillonnage, nous entendons la détermination du nombre de champs minimal pour obtenir une information représentative de l'échantillon entier.

Pour que l'on puisse effectuer des mesures relatives à cet ensemble indépendamment de la position des champs, celui-ci doit être la réalisation d'un ensemble aléatoire stationnaire. Il faut donc s'assurer que la mesure du taux surfacique de la porosité déterminé localement ne dépend pas de la position du masque de mesures. Pour cela, deux lots de 100 images à un grandissement de 2000 ont été acquis sur deux morceaux différents d'un même échantillon. Le taux surfacique de la porosité a été mesuré en seuillant tout d'abord automatiquement l'image par la technique de maximisation d'entropie détaillée plus loin, puis en effectuant une ouverture - reconstruction de taille 2 et enfin en comptant le nombre de pixels présents dans la porosité sur le nombre total de pixels du champ. Les résultats sont présentés dans le Tableau 16. La valeur est constante à l'incertitude de mesure près. Le taux

1715-2h	Taux surfacique de la porosité (%)
Lot 1	9,8
Lot 2	10,4

Tableau 16 : Influence du masque de mesure

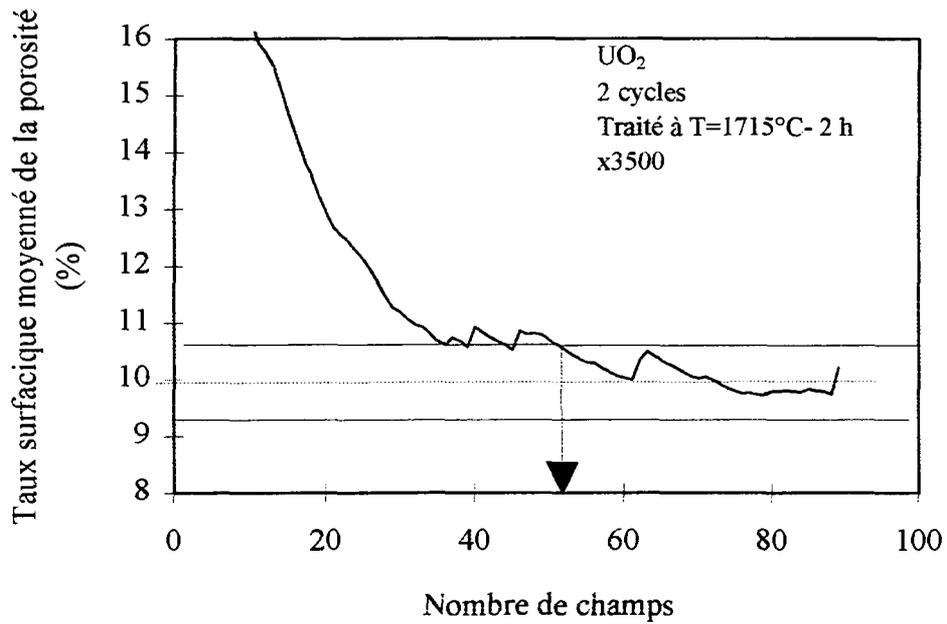
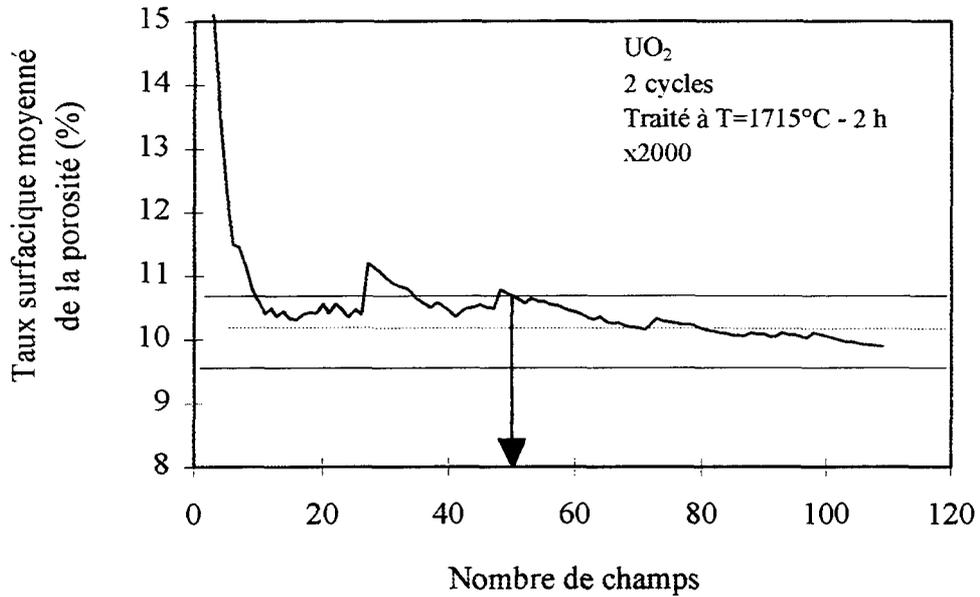


Figure 48 : Détermination du nombre de champs minimal

surfactive de la porosité ne dépend donc pas de la position ce qui valide la condition de stationnarité. Il n'est donc pas nécessaire d'appliquer les méthodes géostatistiques [34], puisque le champ d'analyse est représentatif de la structure globale.

Pour déterminer le nombre de champs à analyser, nous avons utilisé le principe de la moyenne mobile de la teneur. Nous considérons que le nombre de champs est suffisant, lorsque cette moyenne se stabilise et reste à l'intérieur d'un intervalle d'erreur choisi à  $\pm 0,5\%$ . La Figure 48 présente l'évolution de la moyenne du taux surfactive en fonction du nombre de champs à un grandissement de 2000 et à un grandissement de 3500. La mesure se stabilise à partir de 50 champs à 2000 et 55 champs à 3500. L'opération a été répétée sur plusieurs échantillons différents. Il apparaît, en définitive, que 60 champs sont suffisants pour déterminer une mesure stable du taux surfactive de chaque échantillon à un grandissement de 2000 et 100 à un grandissement de 3500.

#### (2) Grandissement

Il s'agit de déterminer un grandissement suffisant pour voir la porosité, mais pas trop important pour limiter le nombre de champs et éviter des objets trop grands par rapport à ce champ. De plus, l'augmentation du grandissement provoque une diminution de la profondeur de champ et donc fournit une image moins nette. Deux valeurs ont été retenues : 2000 et 3500. La taille minimale de la porosité prise en compte est de  $0,2 \mu\text{m}$  à un grandissement de 2000 et  $0,12 \mu\text{m}$  à un grandissement de 3500.

#### (3) Réglage du contraste et de la brillance

Il est effectué à partir de l'histogramme des niveaux de gris de l'image. Le réglage est optimal quand l'histogramme utilise tous les niveaux de gris et qu'il n'est pas saturé ni en noir(0) ni en blanc (255).

#### (4) Calibrage

Le calibrage consiste à définir une échelle entre l'image réelle et l'image obtenue sur l'écran de l'analyseur d'images à l'aide d'un micromètre objet, puis à s'assurer du respect des formes par l'analyse d'un quadrillage dont les cotes sont connues. Cette opération a été faite pour chaque grandissement du M.E.B..

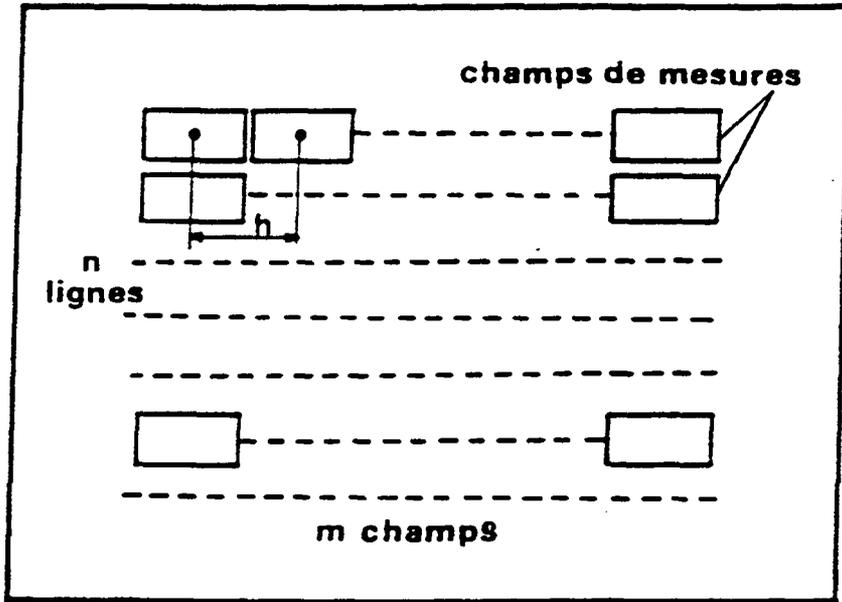


Figure 49 : Implantation des champs dans la zone d'études

c) *Acquisition automatique*

L'acquisition des images se fait automatiquement. Pour cela, l'analyseur d'images contrôle le moteur pas à pas du déplacement de la platine du M.E.B. par l'intermédiaire d'une carte possédant des sorties en tout ou rien.

Les champs sont implantés régulièrement (Figure 49). La zone d'études est définie par l'opérateur qui impose un champ de départ et un champ de fin. Le M.E.B. balaye le rectangle en lignes. Les champs sont choisis non jointifs. De toutes façons, le moteur n'est pas suffisamment précis pour permettre une juxtaposition parfaite. A chaque déplacement, l'image est mémorisée sur le disque optique.

V.3.2. Traitement automatique des images : Seuillage

Compte tenu du nombre important de champs à analyser, il est souhaitable d'automatiser les différentes étapes du traitement d'images.

Nous avons vu que les images en niveaux de gris ne nécessitaient pas de filtrage préalable avant seuillage. Les pores sont en noir sur un fond gris. L'extraction des objets consiste donc à seuiller l'image par borne supérieure (III.3.2 du chapitre 3). L'étape de seuillage est très importante car c'est à ce stade que nous perdons le maximum d'informations. Plusieurs méthodes de seuillage automatique existent. Les plus utilisées en microscopie quantitative correspondent à une segmentation de l'image à partir de l'analyse de l'histogramme des niveaux de gris. Les méthodes les plus courantes sont :

- l'utilisation des gradients et des laplaciens des distributions [36]
- le seuillage par maximisation de la variance interclasse [37]
- le seuillage par maximisation d'entropie [38].

La première méthode n'est efficace que si les pics liés à chacune des phases sont bien distincts, ce qui n'est pas le cas ici.

La seconde méthode est basée sur l'analyse discriminante [37]. Ce type de méthode donne de bons résultats lorsque les fractions surfaciques des phases à séparer sont comparables. Cette condition n'est pas remplie par nos échantillons.

Le seuillage par maximisation d'entropie [38] est la méthode que nous avons choisie. Elle donne en effet de bons résultats lorsque la fraction surfacique des phases présente des écarts importants, ce qui correspond à notre cas. Nous allons donc décrire cette méthode plus en détail.

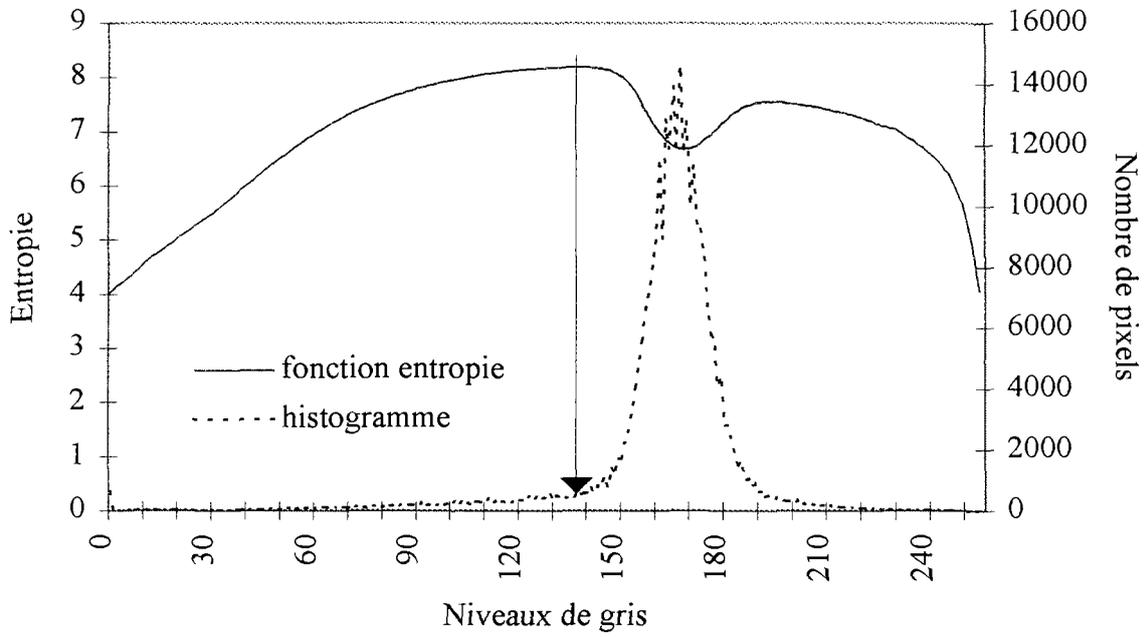
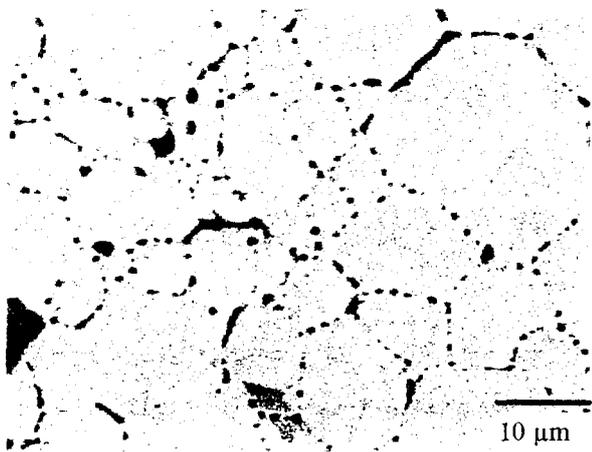
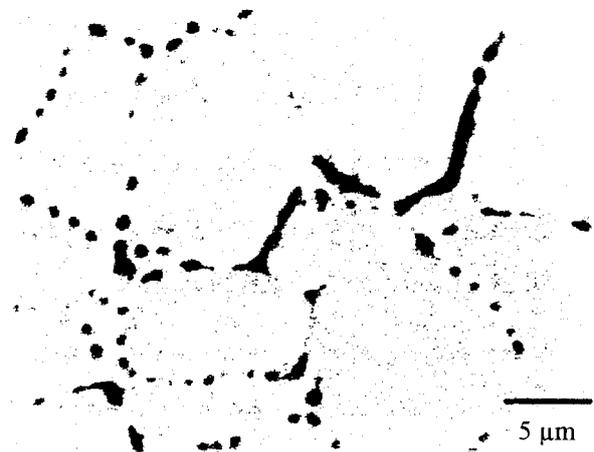


Figure 50 : Comparaison de l'entropie et de l'histogramme d'une image



Grandissement : x2000



Grandissement : x 3500

Figure 51 : Images seuillées par maximisation d'entropie

a) *Seuillage par maximisation d'entropie*

Cette méthode [38] consiste à maximiser l'entropie de l'image seuillée, afin de rendre maximaux les contrastes entre les classes. La fonction entropie dans une classe C dont les niveaux de gris varient de p à q ( $p < q$ ) est définie par :

$$H(k) = - \sum_{i=p}^q \frac{h(i)}{N} \ln \frac{h(i)}{N}$$

où  $h(i)$  est le nombre de pixels ayant le niveau de gris  $i$ ,  $N$  le nombre de pixels dans la classe C.

Dans le cas d'un seuil unique qui délimite deux classes  $C_1$  et  $C_2$ , l'entropie  $H(k)$  d'une image est la somme des entropies  $H(C_1)$  et  $H(C_2)$  de chaque classe, obtenue par la relation :

$$H(k) = H(C_1) + H(C_2) = - \sum_{i=0}^k \frac{h(i)}{N(1)} \ln \frac{h(i)}{N(1)} - \sum_{i=k+1}^{255} \frac{h(i)}{N(2)} \ln \frac{h(i)}{N(2)}$$

ce qui devient après calculs :

$$H(k) = - \frac{1}{N(1)} \sum_0^k h(i) \ln(h(i)) - \frac{1}{N(2)} \sum_{i=k+1}^{255} h(i) \ln(h(i)) + \ln(N(1)) + \ln(N(2))$$

Le seuil  $t$  de l'image est le niveau de gris pour lequel l'entropie  $H(k)$  est maximale.

La Figure 50 présente l'entropie d'une image d'un échantillon traité thermiquement en fonction du niveau de gris. L'entropie maximale correspond à un seuil de 136. Si l'on compare à l'histogramme de l'image (Figure 50), trois zones sont déterminées : la porosité en noir, le fond de la matrice en gris et les contours en clair. La Figure 51 superpose le seuillage effectué et l'image en niveaux de gris pour un grandissement de 2000 et de 3500.

b) *Comparaison du seuillage automatique et du seuillage manuel*

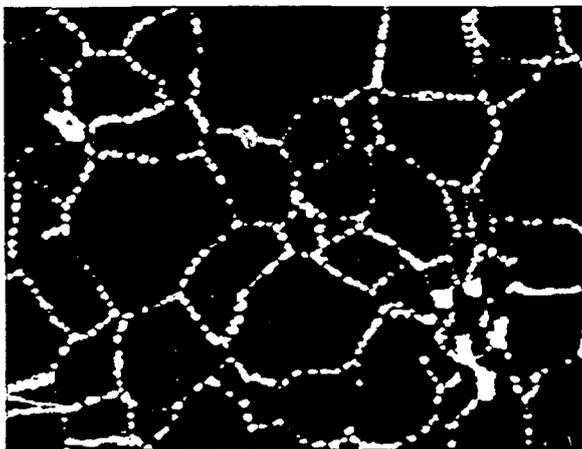
La méthode de seuillage par maximisation d'entropie est comparée au seuillage manuel effectué par deux opérateurs différents. Le Tableau 17 montre une bonne cohérence entre les seuillages. De plus, le Tableau 18 montre qu'il y a des fluctuations du seuil lorsqu'on opère manuellement. Il existe, bien sûr, un écart entre les deux expérimentateurs mais aussi des différences dans le temps. Ceci montre l'intérêt d'utiliser un seuillage automatique, qui aura le mérite d'être reproductible.

Champ	Seuil	
	Manuel	Automatique
1	134	134
2	131	134
3	133	130
4	132	138
5	130	134

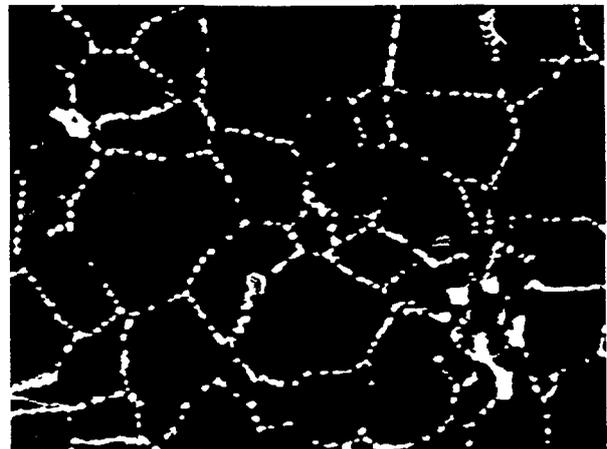
Tableau 17 : Comparaison du seuillage manuel et du seuillage automatique

Champ	Seuil		
	Exp.1	Exp. 2	Exp. 1 le lendemain
1	134	128	131
2	131	132	124
3	133	129	130
4	132	135	135
5	130	124	128

Tableau 18 : Seuillage manuel effectué par deux opérateurs, à des instants différents



A



B

10  $\mu$ m

Figure 52 : Comparaison d'une image binaire brute (photo A) et d'une image binaire érodée et reconstruite (photo B)

### V.3.3. Traitements des images binaires : Filtrage

#### a) *Élimination du bruit par érosion et reconstruction*

Pour éliminer le bruit de fond de l'image binaire, nous filtrons l'image par une opération d'ouverture-reconstruction (III.3.3 du chapitre 3). L'image des marqueurs est formée en érodant l'image seuillée par un élément structurant carré de taille 2. La Figure 52 présente une image binaire avant et après filtrage.

#### b) *Élimination des artefacts et de la porosité initiale de taille importante*

On a vu que le polissage peut provoquer des arrachements qui sont assimilables à des pores de taille importante pouvant fausser la mesure. Pour minimiser l'influence des ces défauts, nous éliminons les éléments de taille importante qui, comme nous le verrons, ne participent pas au gonflement. Pour cela, nous filtrons l'image par une opération d'ouverture reconstruction en utilisant un élément structurant carré d'une taille  $\lambda$  à déterminer. Ainsi les objets ou parties d'objet d'épaisseur supérieure à cette taille  $\lambda$  sont isolés et ne sont pas pris en compte.

Pour déterminer la taille  $\lambda$  de l'élément structurant, le taux surfacique d'images de trois échantillons dont deux, traités thermiquement respectivement à 1715°C pendant 2h et 1410°C pendant 1h et un échantillon, non traité thermiquement a été mesuré en filtrant progressivement les images par un élément de taille variable. Le gonflement a été déduit de la différence entre l'état traité thermiquement et l'état non traité. La Figure 53 présente le gonflement obtenu en fonction de la taille de l'élément structurant. Elle montre qu'à partir d'une taille de 3,2  $\mu\text{m}$ , la mesure du gonflement a atteint un palier : les éléments de l'image de taille supérieure à 3,2  $\mu\text{m}$  ne participent pas au gonflement. C'est donc cette taille de filtre qui a été retenue par la suite.

### V.3.4. Analyse

#### a) *Taux surfacique de la porosité*

On mesure tout d'abord le taux surfacique de la porosité de chaque champ. Il est égal au rapport de la surface occupée par la porosité  $P(P)$  à laquelle on soustrait les objets de taille supérieure à 3,2  $\mu\text{m}$   $P(P')$  et de la surface totale du champ  $P(T)$  à laquelle on ôte à nouveau les objets de taille supérieure à 3,2  $\mu\text{m}$   $P(P')$  :

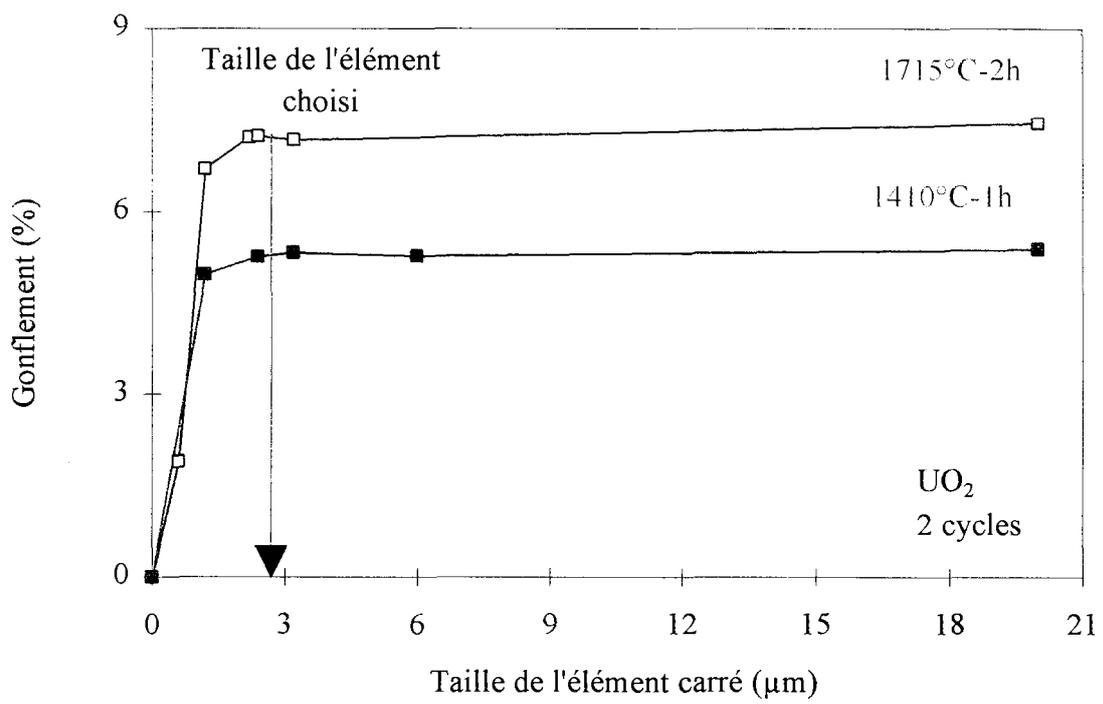


Figure 53 : Filtrage des images par une taille d'élément variable

$$A_A(P) = \frac{P(P) - P(P')}{P(T) - P(P')} \times 100 \quad (\text{IV. 12})$$

Ce taux surfacique par champ est ensuite moyenné sur la totalité des champs enregistrés de l'échantillon et la fraction volumique de la porosité en est déduite d'après la relation stéréométrique de la partie (III. 4) du chapitre 3. On détermine ainsi la fraction volumique moyenne de chaque échantillon.

Le gonflement intergranulaire se calcule à partir de la formule démontrée dans la partie (III. 3) du chapitre 3, rappelée ci-dessous :

$$G = \frac{V_v(P)_{(i)} - V_v(P)_{(f)}}{1 - V_v(P)_{(f)}}$$

où  $V_v(P)_{(i)}$  et  $V_v(P)_{(f)}$  sont respectivement les fractions volumiques avant et après traitement.

b) *Distribution de la porosité par granulométrie par ouverture reconstruction*

Pour établir la distribution de taille de la porosité par analyse d'images, on dispose d'un certain nombre de méthodes. Lorsque la porosité est interconnectée, la seule méthode est le granulométrie par ouverture avec des éléments structurants convexes (linéaires ou bidimensionnels).

Lorsque les pores sont individualisables, on a plus de choix. A la méthode précédente, on peut ajouter deux autres méthodes. La première consiste à prendre chaque pore, à évaluer sa taille selon le critère choisi (surface, longueur...) et à effectuer ensuite le tri selon ce critère. La seconde méthode est basée sur des opérateurs morphologiques. On peut la comparer à la méthode par ouverture. La seule différence est que chaque pore plus épais que l'élément structurant sera intégralement reconstruit. On obtient alors une granulométrie par ouverture reconstruction  $R^\lambda(X)$  selon l'expression :

$$G(\lambda) = \frac{A(X) - A(R^\lambda(X))}{A(X)}$$

où  $\lambda$  est la taille de l'élément structurant,  $A(X)$  l'aire des objets et  $A(R^\lambda(X))$  l'aire après érosion reconstruction.

Dans ces conditions, le critère de taille est l'épaisseur et la granulométrie est établie en mesure comme dans le cas d'un tamisage.

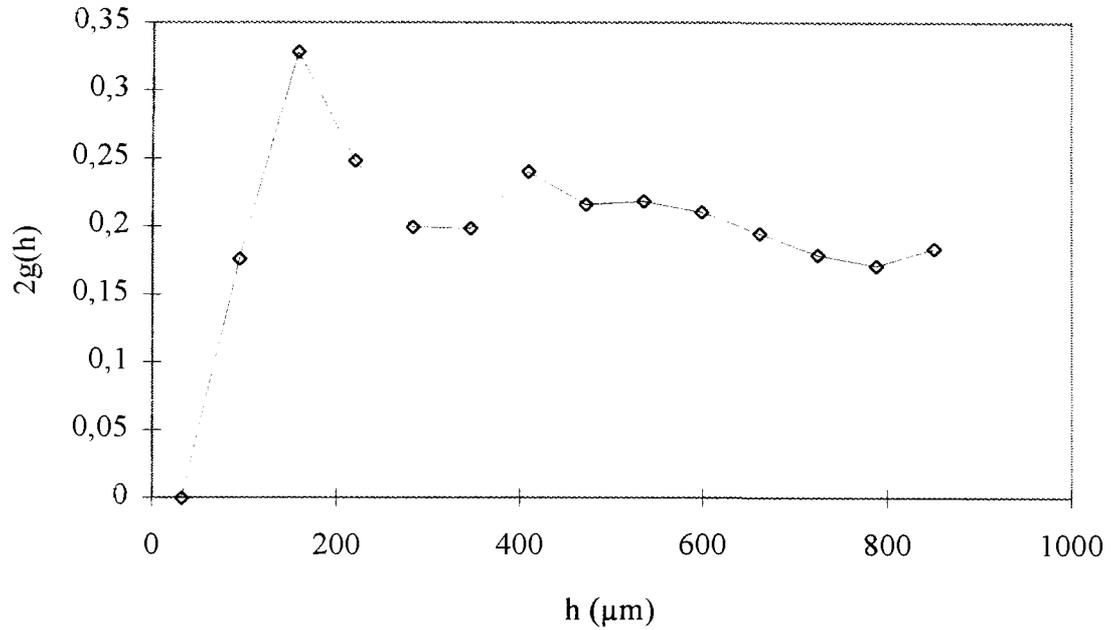


Figure 54 : Variogramme d'un échantillon traité thermiquement à 1715°C pendant 1h

*(à partir de  $h = 200 \mu\text{m}$ , la courbe a atteint une asymptote :  
les champs distants de  $h > 200 \mu\text{m}$  sont indépendants)*

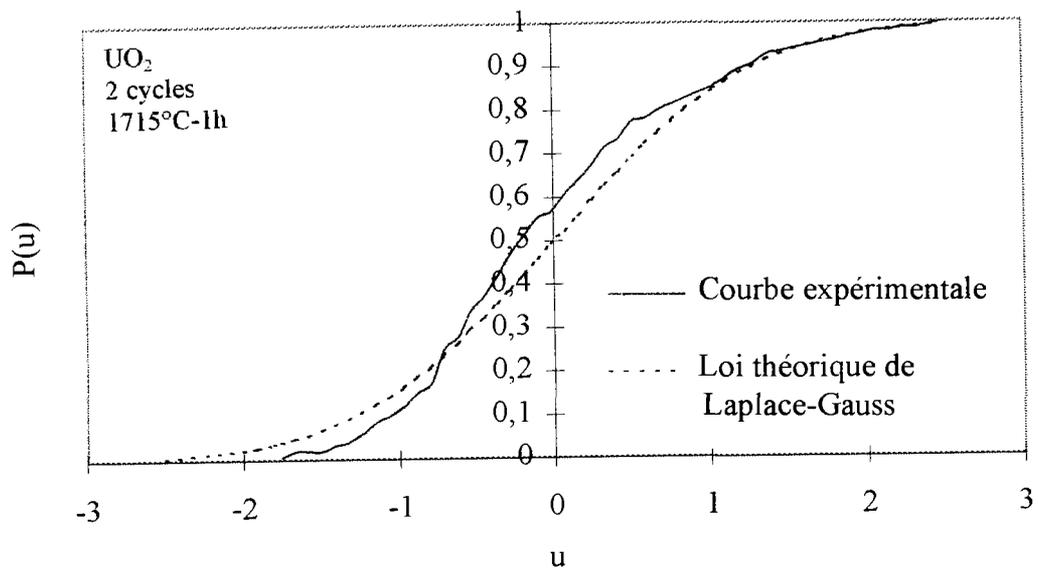


Figure 55 : Comparaison de la distribution statistique expérimentale et de la loi théorique de Laplace-Gauss

#### V.4. Précision de la mesure

Dans cette partie, nous allons déterminer les erreurs commises au cours des mesures. Elles peuvent être statistiques, liées à l'extraction des données, à la préparation des échantillons et à la mise au point.

##### V.4.1. Erreurs statistiques

Dans cette partie, nous allons déterminer l'erreur statistique commise dans l'estimation du taux surfacique de la porosité.

Il faut au préalable s'assurer que les lois statistiques peuvent s'appliquer : les mesures du taux surfacique de la porosité, de deux champs distants de  $h$ , doivent être indépendantes. Pour cela, on a utilisé l'outil principal de la géostatistique, le variogramme. Soit deux variables ayant pour support un champ distant de  $h$ . Le variogramme va justement permettre d'évaluer la dépendance qui existe entre une des variables  $f(x)$  mesurée au champ en  $x$  et la même variable  $f(x+h)$  mesurée en  $x+h$ . Les champs de mesures sont implantés régulièrement. Si  $m$  est le nombre de champs espacés de  $h$ , sur une ligne analysée et  $n$  le nombre de lignes, la fonction variogramme  $\gamma(h)$  [39] est définie par :

$$2\gamma(h) = \frac{1}{n(m-k)} \sum_{i=0}^k (f(x+ih)^2 - f(x)^2)$$

La Figure 54 présente le variogramme obtenu sur un échantillon traité thermiquement à 1715°C pendant 1 heure. La courbe atteint son asymptote très rapidement. En première approximation, deux champs suffisamment éloignés sont indépendants. Nous pouvons donc appliquer les méthodes statistiques classiques.

Nous avons déterminé l'écart type d'un lot de 153 images d'un échantillon traité thermiquement à 1715°C pendant 1 heure. On obtient 1% par rapport à la moyenne.

Nous avons ensuite étudié si la distribution statistique expérimentale des mesures du taux surfacique de la porosité suit une loi statistique de Laplace-Gauss. Pour cela, on a tracé la fréquence cumulée  $P(U)$  en fonction de la variable  $U$ , définie par l'expression :

$$U = \frac{\bar{x} - p}{\sigma}$$

où  $\bar{x}$  est une variable aléatoire,  $p$  l'estimation de la moyenne de la population et  $\sigma$  l'écart type.

La Figure 55 présente la distribution expérimentale et théorique d'un échantillon traité thermiquement à 1715°C pendant 1 heure. Elle met en évidence un décalage des points bas

	Seuil(niveaux de gris)	%S
Seuil entropie	136	7,3
Seuil entropie-5	131	6,5
Seuil entropie+5	141	8,3

Tableau 19: Influence du seuillage sur la précision de la mesure

1715°C-2h	%S
Image nette	9,8
Image légèrement défocalisée	9

Tableau 20 : Influence du réglage de la netteté

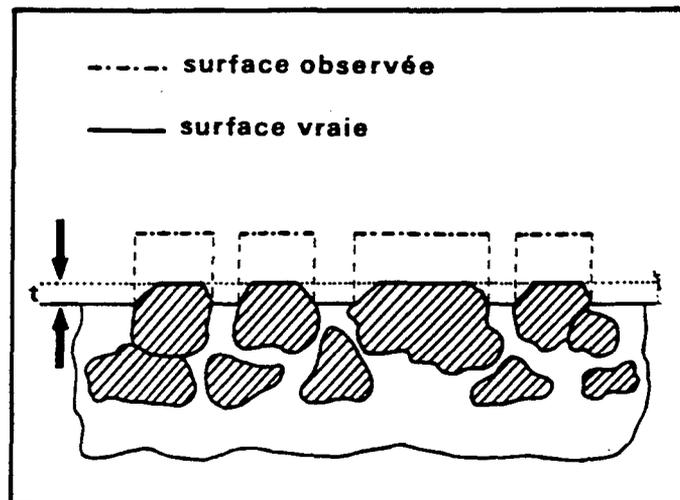


Figure 56 : Influence du polissage

de la distribution vers les points du centre qui surestime la moyenne d'environ 0,2%. Pour comparer les deux distributions, on a appliqué le test du  $\chi^2$ . Pour cela, on calcule :

$$\chi^2 = \sum \frac{(O_i - T_i)^2}{T_i}$$

où,  $O_i$  est l'effectif expérimental et  $T_i$  est l'effectif estimé par la loi théorique.

Le calcul donne  $\chi^2=16,27$  (Annexe 7a). Dans la table du  $\chi^2$  (Annexe 7b), pour un degré de liberté de 6 (neuf classes statistiques, liées par trois relations qui déterminent la loi théorique), on a entre une et deux chances sur cent pour que cette valeur de 16,27 ait été atteinte. L'ajustement n'est donc pas valable. Ce décalage d'environ 0,2% est cependant négligeable par rapport aux incertitudes de 1%.

#### V.4.2. Influence du seuillage sur la précision de la mesure

Nous avons ensuite étudié l'influence du seuillage sur la mesure. Lors de la comparaison du seuil automatique et du seuillage manuel, les niveaux de gris fluctuent de  $\pm 5$ . Un écart de  $\pm 5$  introduit une imprécision de  $\pm 1\%$  sur le taux de la porosité. (Tableau 19). Le niveau de seuillage est déterminé automatiquement par maximisation de l'entropie. L'erreur introduite sur la mesure se reproduit donc de façon systématique sur tous les échantillons.

#### V.4.3. Influence de la mise au point

Le réglage de la mise au point a aussi une influence sur la mesure. Son effet a été étudié en modifiant très légèrement la netteté de l'image. Le Tableau 20 montre une différence de 0,8% entre l'image nette et l'image légèrement défocalisée.

#### V.4.4. Erreurs dues à la préparation des échantillons

Les problèmes liés à la préparation des échantillons ont déjà été abordés dans la partie V.2.3 du chapitre 4. Comme on l'a vu, une des erreurs provient du polissage, qui creuse plus l'araldite que le matériau. Les deux matériaux ne se situent alors plus dans le même plan (Figure 56). Ce problème introduit une différence entre la fraction d'aire réelle et la fraction d'aire observée (effet Holmes). Il a été abordé par M. Coster [55]. Les matériaux étudiés ont été polis mais aussi attaqués chimiquement. L'effet conjugué de l'attaque et du polissage a été calculé à partir de la correction proposée par J.W. Cahn et J. Nutting [54]. Il introduit une erreur de 1% sur la fraction volumique du carbure de tungstène d'environ 80%.

G(%)	Température(°C)			
Temps (mn)	1410	1545	1630	1715
5		*0,1	*1	4,0
15				7,1
30		*2,2		
60	2,5	3,0	5,6	7,5
120				7,9
300	4,7	4,6	7,0	9,6
600		6,8		8,9

\* mesure non retenue

Tableau 21 : Gonflement intergranulaire déterminé par analyse d'images, en fonction du temps et de la température, à un grandissement de 2000

G(%)	Température(°C)			
Temps (mn)	1410	1545	1630	1715
5	1,7	2,2	3,5	4,4
15				5,7
30		5,4		6,9
60	3,0	4,1	6,4	7,4
120				7,4
300	3,6	6,1	6,8	9,3
600		7,4		8,5

Tableau 22 : Gonflement intergranulaire déterminé par analyse d'images, en fonction du temps et de la température, à un grandissement de 3500

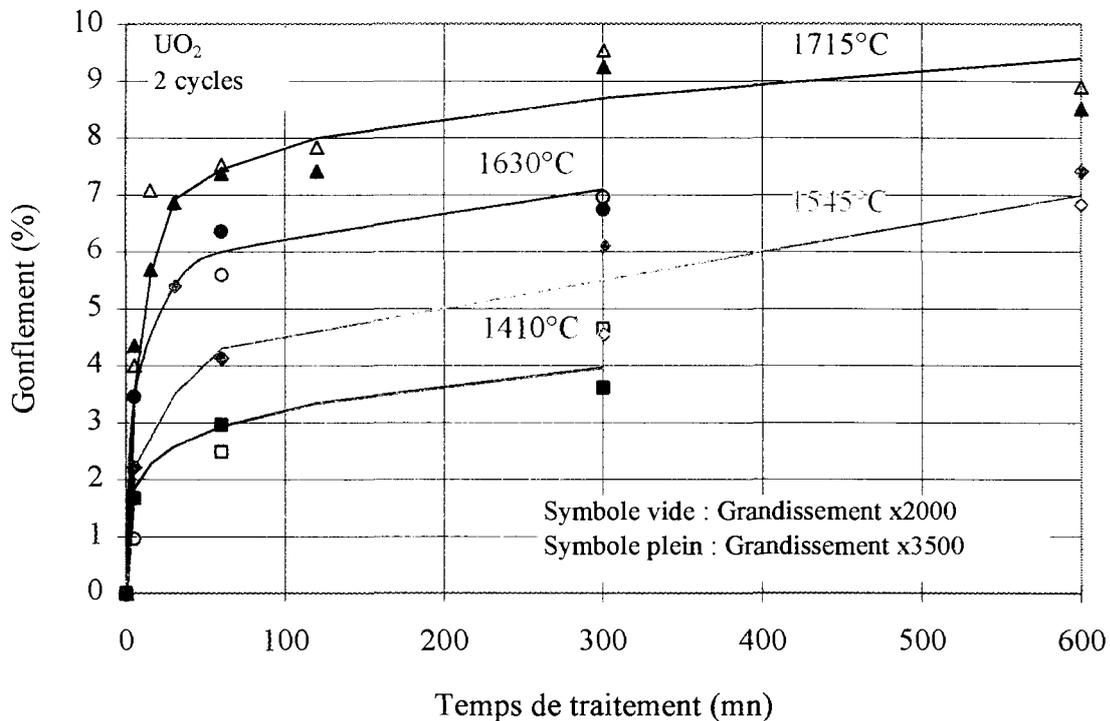


Figure 57 : Gonflement intergranulaire déterminé par analyse d'images, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

(ces mesures donnent la porosité intergranulaire, fermée et ouverte)

Incertitude absolue de mesure sur le gonflement :  $\pm 1\%$

Incertitude de mesure sur la température :  $\pm 20^\circ\text{C}$

#### V.4.5. Bilan des incertitudes de la mesure

Les différents facteurs jouant sur la mesure du taux surfacique de la porosité ne sont pas indépendants. Ils introduisent en moyenne une incertitude de  $\pm 1\%$ .

### V.5. Résultats

Les échantillons traités thermiquement à des températures allant de  $1130^{\circ}\text{C}$  à  $1715^{\circ}\text{C}$  pour des temps de maintien de 5 mn à 600 mn, ainsi que l'échantillon de référence non traité, ont été analysés. Pour cela, nous avons tout d'abord procédé à une acquisition de 100 champs à un grandissement de 2000 et de 150 champs à un grandissement 3500 que nous avons stockés sur des disques optiques. Chaque lot d'images a ensuite été traité suivant la procédure automatique décrite ci-dessus. Chaque champ a été seuillé par la méthode de maximisation d'entropie. L'image binaire engendrée a été ensuite érodée puis reconstruite pour former une image binaire prête à l'extraction du nombre de pixels appartenant à la porosité. La dernière étape du traitement a consisté à éliminer les artefacts (arrachements de grain, poussières, pores initiaux) en filtrant l'image par une opération d'ouverture-reconstruction de taille  $3,2\mu\text{m}$  soit 16 pixels pour un grandissement de 2000 et de 28 pixels pour un grandissement de 3500. Par cette opération les objets de taille inférieure à  $3,2\mu\text{m}$  disparaissent.

#### V.5.1. Gonflement

Le taux surfacique de la porosité est déterminé par la formule (IV. 7) et le gonflement se calcule à partir de l'expression (III. 3). Le gonflement a été calculé pour les deux grandissements 2000 et 3500. Les résultats sont respectivement présentés dans le Tableau 21 et le Tableau 22. Les résultats, à un grandissement de 2000, aux températures inférieures à  $1550^{\circ}\text{C}$  et aux temps inférieurs à 60 mn, montrent une sous estimation du gonflement par rapport aux mesures à un grandissement de 3500. Pour ces échantillons à un grandissement de 2000 la résolution de l'image est trop faible. Ces points ne sont donc pas retenus dans l'analyse. Pour les autres points, le grandissement 2000 présente une meilleure netteté qu'à 3500 mais une moins bonne résolution. Les deux grandissements ont donc été utilisés. Les résultats sont en accord. Le gonflement n'est pas sensible au grandissement choisi.

Ce gonflement déterminé par analyse d'images électroniques en mode rétrodiffusé prend en compte les bulles intergranulaires dont le diamètre est d'environ  $1\mu\text{m}$ . Par contre

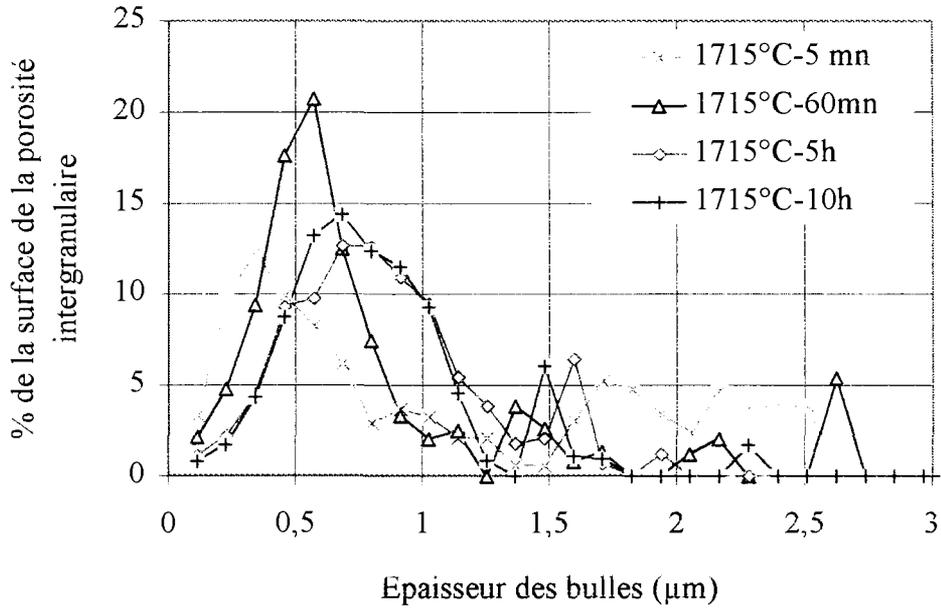


Figure 58 : Histogramme de la porosité intergranulaire en fonction de l'épaisseur des bulles :  
Effet du temps de traitement

(on observe un élargissement du pic avec le temps de traitemem)

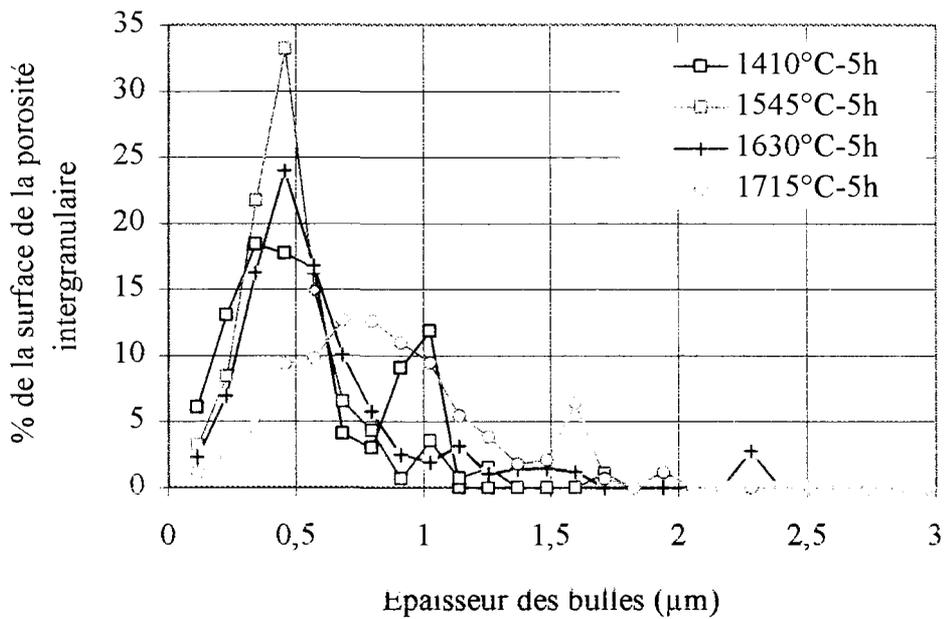


Figure 59 : Histogramme de la porosité intergranulaire en fonction de l'épaisseur des bulles :  
Effet de la température

(on observe un élargissement du pic avec la température)

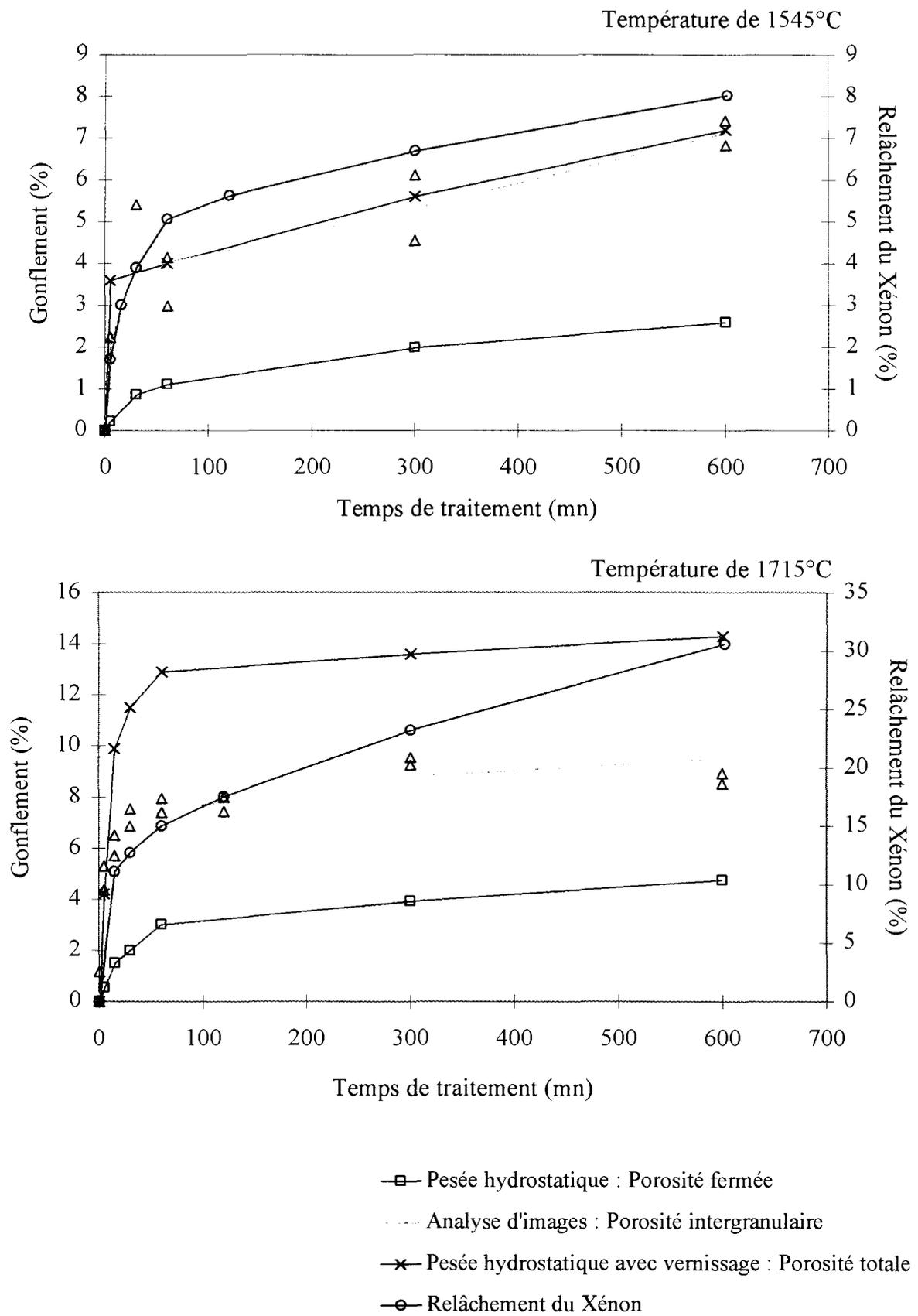


Figure 60 : Superposition des résultats de gonflement obtenus par les trois méthodes et du relâchement du Xénon, en fonction du temps de traitement à 1545°C et 1715°C

Gonflement (%)	1545°C/5h	1715°C/5h
Porosité fermée (Pesée hydrostatique)	2	3,9
Porosité intergranulaire (Analyse d'images)	5,5	9,3
Porosité totale (Pesée hydrostatique avec vernissage)	5,6	13,9

Tableau 23 : Comparaison des résultats de gonflement obtenues par les trois méthodes

les bulles intragranulaires inférieurs à  $0,1\mu\text{m}$  sont trop petites pour être mesurées. **Le gonflement est donc appelé intergranulaire.**

La représentation du gonflement en fonction du temps de traitement (Figure 57) montre **une allure identique pour toutes les températures qui se décompose en deux phases : une phase de gonflement rapide jusqu'à 60 mn et une deuxième phase où l'évolution se ralentit.** En 60 mn, le gonflement passe de 0 à 4,1% à  $1545^{\circ}\text{C}$  et de 0 à 7,4% à  $1715^{\circ}\text{C}$ . Puis, en 540mn, il évolue de 4,1 % à 7% à  $1545^{\circ}\text{C}$  et de 7,4 % à 9,2% à  $1715^{\circ}\text{C}$ .

**Plus la température est élevée, plus le gonflement est important.**

#### V.5.2. Distribution de la porosité par granulométrie

Quelques échantillons ont été traités par granulométrie (V.3.4.b) pour étudier l'effet du temps de traitement et de la température sur la distribution de la porosité intergranulaire. Les courbes de granulométrie présentées sur la Figure 58 et la Figure 59 montrent un pic important à environ  $0,5\ \mu\text{m}$  pour tous les traitements étudiés. Ce pic s'élargit avec le temps de traitement et la température.

#### V.6. Comparaison à d'autres études expérimentales

K. Une et S. Kashibe [48] ont mesuré un gonflement intergranulaire de 7% à une température de  $1600^{\circ}\text{C}$  pendant 5h et de 9-10% à  $1800^{\circ}\text{C}$  pendant 5h pour un taux de combustion de 23 GWj/tU. Ces mesures sont tout à fait en accord avec les mesures effectuées dans cette thèse (Figure 57).

Les mêmes auteurs [20] ont montré, en outre, que le gonflement intergranulaire se sature à environ 7-10%, ce qui est aussi le cas des courbes de la Figure 57 (à  $1715^{\circ}\text{C}$ , la courbe tend vers une valeur de 9-10%). **Ils attribuent ce phénomène à la saturation progressive de la surface des joints de grains qui devient un facteur limitant l'augmentation de ce gonflement.**

## VI. COMPARAISON DES DIFFERENTS RESULTATS EXPERIMENTAUX OBTENUS

### VI.1. Comparaison des résultats obtenus par les différentes méthodes

La Figure 60 et le Tableau 23 permettent cette comparaison.

Les valeurs obtenues par la pesée hydrostatique sont plus faibles que celles obtenues par les deux autres. On a vu que la méthode de pesée hydrostatique ne prend pas en compte

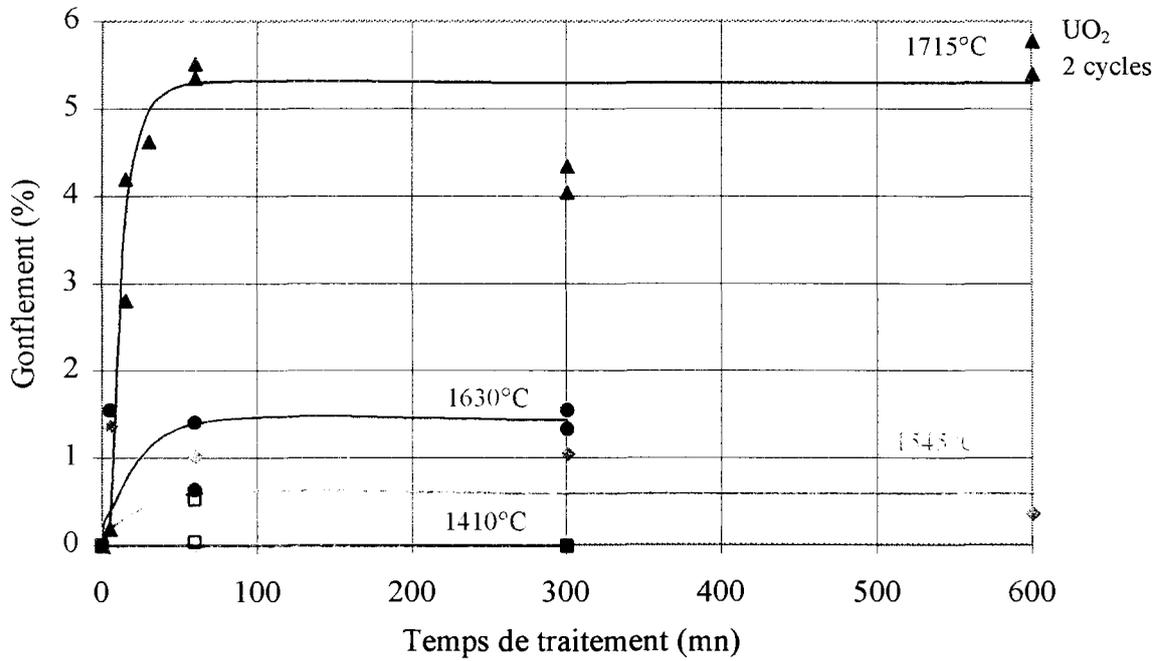


Figure 61 : Gonflement intragranulaire en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

(obtenue par différence entre le gonflement total et le gonflement intergranulaire)

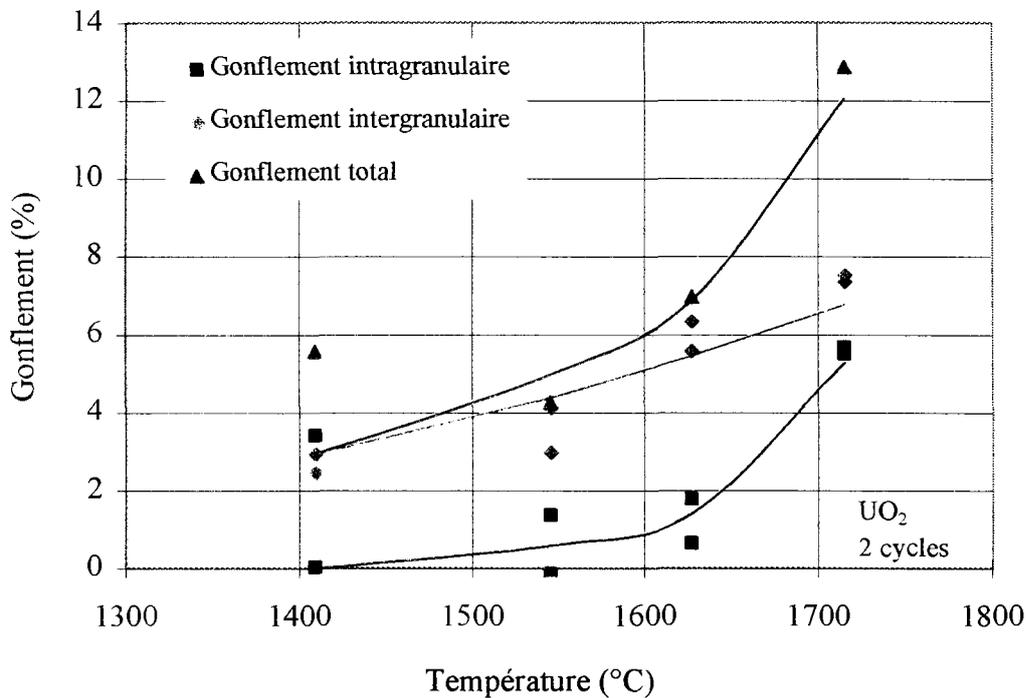


Figure 62 : Gonflement intergranulaire et gonflement intragranulaire, en fonction de la température, pour un temps de traitement de 60 mn

(courbe équivalente à un temps de traitement de 300 mn en Annexe 8)

la porosité ouverte, ce qui montre que **la part de la porosité ouverte dans le gonflement est importante**.

Les valeurs obtenues par pesée hydrostatique avec vernissage et par analyse d'images sont assez proches pour les températures inférieures à 1630°C. **Cette observation peut valider les deux méthodes**. Par contre, à 1715°C, les valeurs par analyse d'images deviennent plus faibles que celles par pesée hydrostatique avec vernissage. Cette différence peut s'interpréter en rappelant que l'analyse d'images ne prend pas en compte les bulles intragranulaires qui pourraient à cette température devenir significatives. On verra qu'à 1715°C, on observe en effet la présence de nombreuses petites bulles intragranulaires de taille inférieures à 0,1 µm.

Si l'on compare les valeurs du **relâchement** des gaz de fission aux valeurs de **gonflement** déterminées par les trois techniques expérimentales, les **évolutions sont comparables** : une **phase rapide jusqu'à environ 60 minutes puis une phase plus lente**. Un gonflement important s'accompagne d'un relâchement de nombreux atomes de gaz de fission et réciproquement. A 1715°C, au delà de 60 minutes, l'évolution du relâchement est cependant plus marquée que celle du gonflement.

## VI.2. Gonflement intragranulaire

Le gonflement intragranulaire est déduit de la différence des mesures du gonflement «total» par pesée hydrostatique avec vernissage et du gonflement intergranulaire par analyse d'images.

L'évolution du gonflement intragranulaire en fonction du temps de traitement pour différentes températures est présentée sur la Figure 61. Elle montre que le gonflement intragranulaire est très faible à 1410°C et qu'il s'emballé progressivement avec la température, jusqu'à un **gonflement significatif** d'environ 5% à 1715°C. Cette **mesure intragranulaire est tout à fait en accord avec les observations de la microstructure**, effectuées au chapitre 5, qui ne montrent la présence de bulles intragranulaires qu'à 1715 °C.

S. Kashibe et K. Une [20] ont mesuré par ailleurs un gonflement intragranulaire du même ordre de grandeur (entre 4-5 %), par analyse d'images en microscopie électronique à transmission, avant et après traitement thermique à 1800°C pendant 300 mn, d'un combustible UO<sub>2</sub> irradié (25 GWj/tU).

Sur la Figure 62, on compare les évolutions du gonflement intergranulaire et du gonflement intragranulaire. L'augmentation avec la température est nettement plus marquée

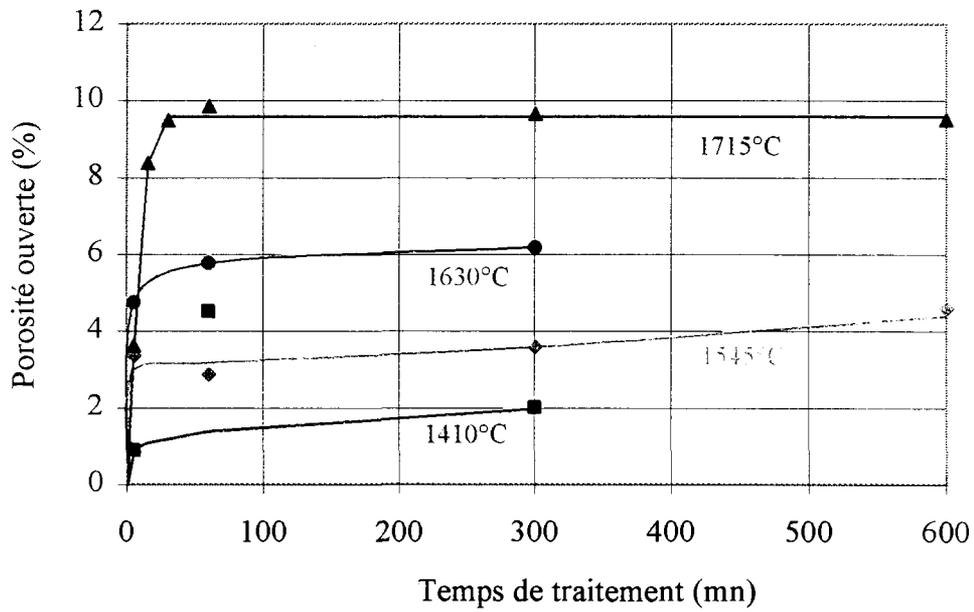


Figure 63 : Porosité ouverte en fonction du temps de traitement, pour différentes températures  
*(obtenue par différence entre le gonflement total et la porosité fermée)*

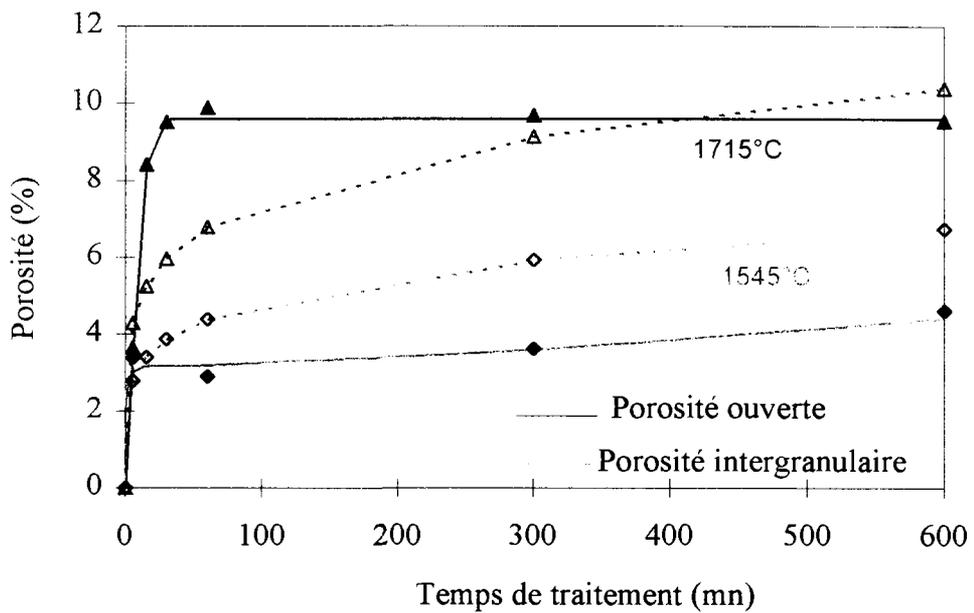


Figure 64 : Comparaison de la porosité ouverte et de la porosité intergranulaire pour une température de 1545°C et une température de 1715°C

pour le gonflement intragranulaire que pour le gonflement intergranulaire. Le gonflement intragranulaire reste cependant jusqu'à 1715°C inférieur au gonflement intergranulaire.

S. Kashibe et K. Une [20] ont aussi mesuré un gonflement intragranulaire inférieur au gonflement intergranulaire pour un même taux de combustion. Ils ont, en outre, montré que cette part relative du gonflement intragranulaire change avec le taux de combustion : le gonflement intragranulaire lorsque le taux de combustion est élevé, dépasse à haute température le gonflement intergranulaire.

### VI.3. Porosité ouverte

L'évolution de la porosité ouverte est obtenue par la différence du gonflement « total » mesuré par pesée hydrostatique avec vernissage et du gonflement (porosité fermée) par la technique de pesée hydrostatique qui ne prend pas en compte la porosité ouverte. La porosité ouverte est due aux bulles intergranulaires qui forment en s'interconnectant des tunnels débouchant sur l'extérieur et à la porosité initiale qui est traversée par ces tunnels.

On observe, sur les courbes de la Figure 63, une **ouverture très rapide et considérable de la porosité** qui se sature en 30 mn. A 1545°C, 3,5% de la porosité est ouverte, et à 1715°C, 10%. Elle est d'autant plus importante que la température est plus élevée.

La Figure 64 compare la porosité intergranulaire (ouverte et fermée) et la porosité ouverte (intergranulaire et initiale). A 1545°C, le volume de la porosité intergranulaire et celui de la porosité ouverte sont quasiment identiques jusqu'à 30 mn. Cela laisse penser que la porosité intergranulaire est essentiellement ouverte. Puis, les deux courbes s'écartent avec le temps de traitement. La différence est due à la porosité intergranulaire fermée qui évolue. A 1715°C, le volume de la porosité intergranulaire est inférieur à celui de la porosité ouverte. Cela peut en fait s'expliquer en rappelant que la mesure de la porosité ouverte comprend une part due à la porosité initiale.

Comme on le verra au chapitre 5, la porosité ouverte sera associée au relâchement des gaz de fission.

## VII. RESUME

### *Evolution du gonflement avec le temps et la température*

Les trois techniques utilisées ont permis de suivre l'évolution du gonflement avec le temps de traitement et la température. Pour toutes les températures, on constate une augmentation rapide pendant les 60 premières minutes de traitement, suivie pour les temps

plus longs d'une faible croissance. L'effet de la température sur le gonflement est d'autant plus fort que la température est plus élevée.

#### *Evolution du relâchement avec le temps et la température*

Le relâchement des gaz de fission évolue de la même façon que le gonflement : augmentation rapide dans les soixante premières minutes de traitement, puis croissance lente avec effet accélérateur de la température.

#### *Partage entre gonflement dû à la porosité intragranulaire et gonflement dû à la porosité intergranulaire*

On a comparé les valeurs obtenues par pesée hydrostatique avec vernissage et celles provenant de l'analyse d'images. Elles sont assez proches pour les températures inférieures à 1630°C. Cette observation permet de valider les deux méthodes. Par contre, à 1715°C, les valeurs par analyse d'images deviennent plus faibles que celles par pesée hydrostatique avec vernissage. Cette différence peut s'interpréter en rappelant que l'analyse d'images ne prend pas en compte les bulles intragranulaires, qui pourraient pour le traitement considéré, devenir significatives. De cette manière, en faisant la différence entre les deux catégories de mesures, on a suivi l'évolution du gonflement intragranulaire en fonction du temps pour différentes températures. On voit que le gonflement intragranulaire est très faible à 1410°C et qu'il augmente ensuite progressivement avec la température. Il reste cependant, jusqu'à 1715°C, inférieur au gonflement intergranulaire.

#### *Porosité ouverte*

Les valeurs de gonflement obtenues par la méthode classique de pesée hydrostatique sont plus faibles que celles obtenues par les deux autres méthodes. Comme cette méthode ne prend pas en compte la porosité ouverte, on peut en déduire que la part de celle-ci est importante. L'évolution de la porosité ouverte montre que dès les premières minutes, les pores s'ouvrent. Au delà de 30 minutes, la porosité ouverte n'évolue plus.

---

**CHAPITRE 5**

---

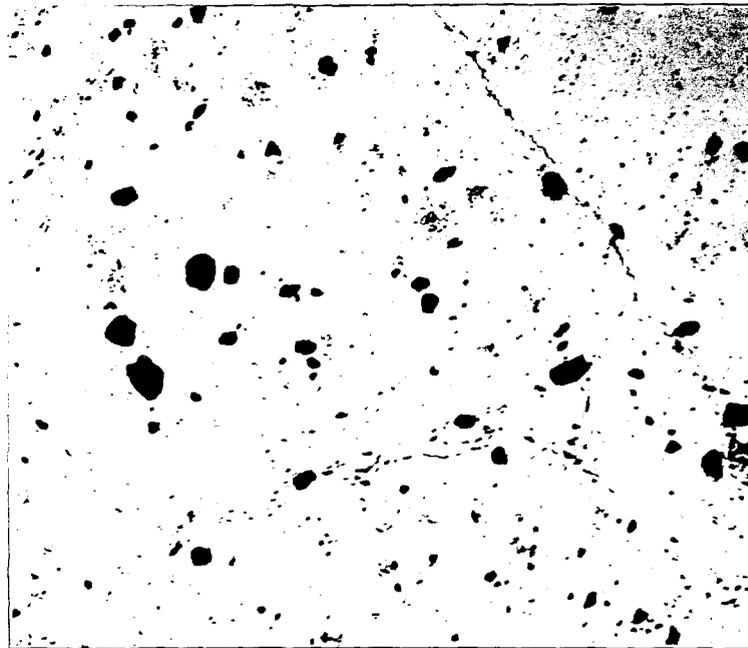
**EXAMENS MICROGRAPHIQUES ET INTERPRETATIONS  
DES MESURES DU GONFLEMENT ET DU  
RELACHEMENT**

## SOMMAIRE DU CHAPITRE 5

### EXAMENS MICROGRAPHIQUES ET INTERPRETATIONS DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT

I. EXAMENS MICROGRAPHIQUES.....	84
I.1. Echantillons polis.....	84
I.1.1. Observations des bulles intergranulaires .....	85
a) Taille et forme des bulles.....	85
b) Nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains .....	85
c) Réseaux de bulles.....	85
I.1.2. Analyse quantitative des micrographies .....	86
a) Nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains .....	86
b) Taille des bulles.....	86
I.1.3. Observation des bulles intragranulaires.....	87
I.1.4. Taille des grains .....	88
I.2. Echantillons fracturés .....	88
I.2.1. Préparation des échantillons.....	88
I.2.2. Observations.....	89
II. INTERPRETATION DU RELACHEMENT ISOTHERME DES GAZ DE FISSION .....	89
II.1. Etude du relâchement des gaz de fission par diffusion.....	90
II.1.1. Détermination du mécanisme de transport du gaz vers les joints de grains.....	90
a) Confrontation du modèle avec les résultats relatifs au relâchement du Xénon.....	90
b) Analyse des points expérimentaux obtenues avec le Krypton .....	92
II.1.2. Analyse de la dispersion des points à 1715°C.....	92
II.1.3. Etude supplémentaire sur un même échantillon .....	93
II.2. Etude du relâchement des gaz de fission par formation de tunnels.....	93
II.3. Comparaison expérimentale des deux mécanismes de relâchement en présence .....	94
II.4. Analyse critique.....	94
II.4.1. Analyse de l'énergie d'activation apparente de la diffusion atomique.....	94
II.4.2. Comparaison à d'autres études expérimentales.....	95
II.5. Bilan .....	95
III. INTERPRETATION DU GONFLEMENT INTERGRANULAIRE .....	95
III.1. Croissance par coalescence ou (et) par absorption d'atomes .....	96
III.2. Modèle de gonflement par coalescence des bulles.....	98

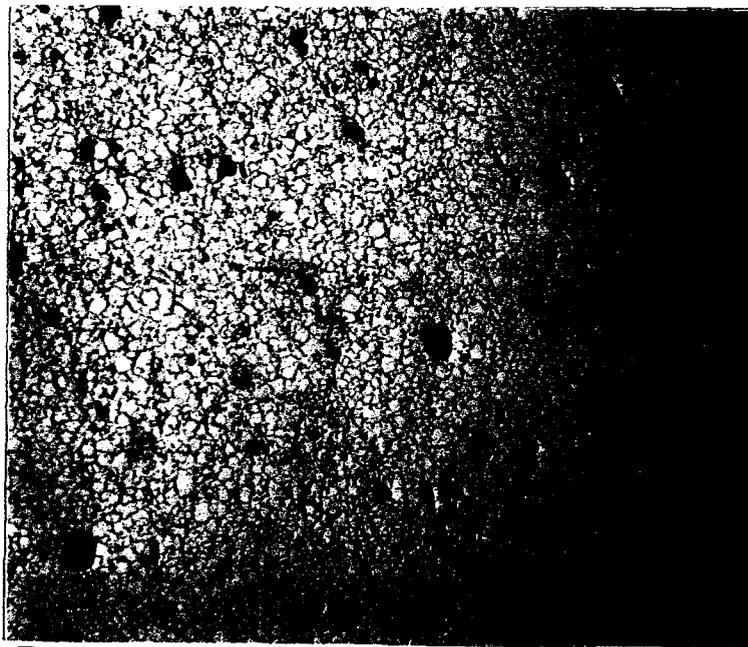
III.3. Confrontation du modèle théorique aux points expérimentaux.....	103
III.3.1. Effet du temps de traitement.....	103
III.3.2. Effet de la température.....	104
IV. SYNTHÈSE DES MÉCANISMES DE GONFLEMENT ET DE RELACHEMENT....	105
V. REPRÉSENTATIVITÉ DES TRAITEMENTS THERMIQUES APPLIQUÉS .....	107



**A**

**Non traité thermiquement  
(Brut de polissage)**

—  
100  $\mu\text{m}$



**B**

**Traité thermiquement  
1715°C/5mn  
(Brut de polissage)**

—  
100  $\mu\text{m}$

Figure 65 : Formation de bulles intergranulaires d'un combustible  $\text{UO}_2$  irradié (25 GWj/tU), suite à un traitement thermique

---

## CHAPITRE 5

---

### EXAMENS MICROGRAPHIQUES ET INTERPRETATIONS DU GONFLEMENT ET DU RELACHEMENT

Dans ce chapitre, on examine, tout d'abord, la structure du combustible avant et après traitement thermique, sur des échantillons polis et fracturés. On analyse, dans le paragraphe suivant, les mesures de relâchement, à partir des mécanismes identifiés dans la littérature. Puis, on aborde l'interprétation des résultats de gonflement. Elle aboutit à la détermination du mécanisme contrôlant le gonflement et à la construction d'un modèle semi-empirique. Enfin, sur la base de ces examens micrographiques, et de ces interprétations du relâchement et du gonflement, on effectue une synthèse qui conduit à la description du comportement des gaz de fission, lors d'un traitement thermique.

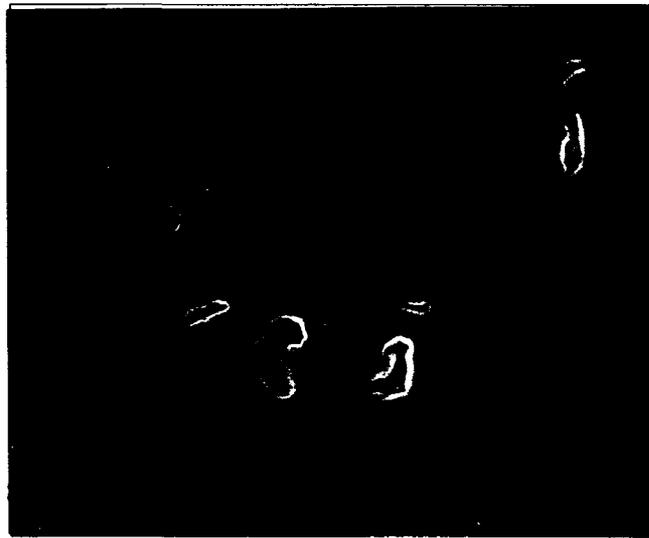
#### I. EXAMENS MICROGRAPHIQUES

Les échantillons polis et fracturés d'un combustible irradié à 25 GWj/tU, avant et après traitement, ont été observés par microscopie électronique à balayage.

##### I.1. Echantillons polis

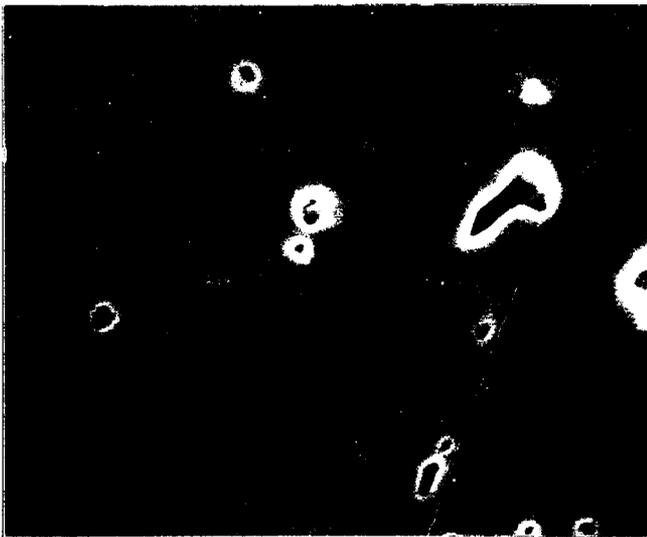
Les examens micrographiques au M.E.B. ont été effectués sur les échantillons préparés pour la mesure du gonflement par la technique d'analyse d'images. Nous rappelons que ces échantillons sont enrobés dans de l'araldite puis polis (IV. 2).

Un examen préalable au microscope optique a été effectué sur tous les échantillons, d'une part pour vérifier l'état de surface après polissage mais aussi pour les observer avant leur analyse au M.E.B.. Pour tous les traitements thermiques, exceptés 1130°C-300 mn et 1410°C-5mn, les joints de grains sont révélés par la formation de bulles intergranulaires de taille inférieure au  $\mu\text{m}$  : sur la photo B d'un échantillon irradié et traité thermiquement à



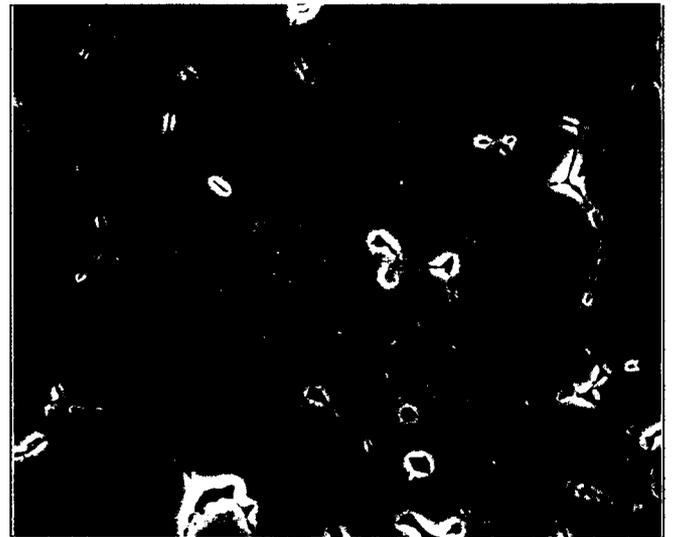
A 300 mn

Figure 66a : Examens micrographiques d'un échantillon traité thermiquement à 1130°C pendant 300 mn



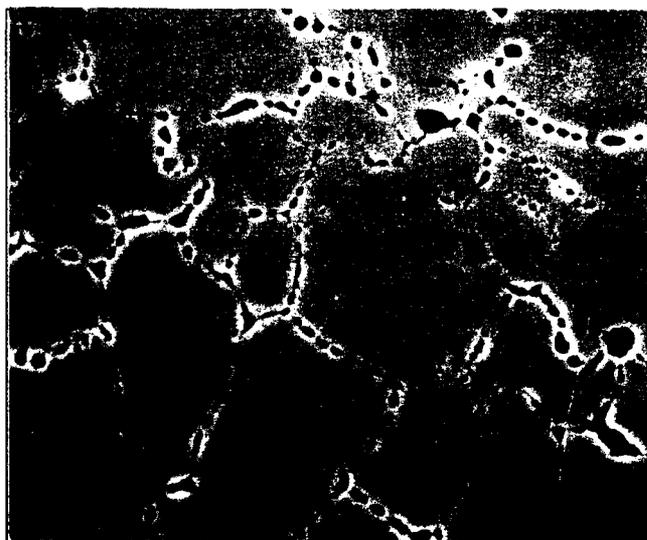
B

5 mn



C

60 mn



D

300 mn

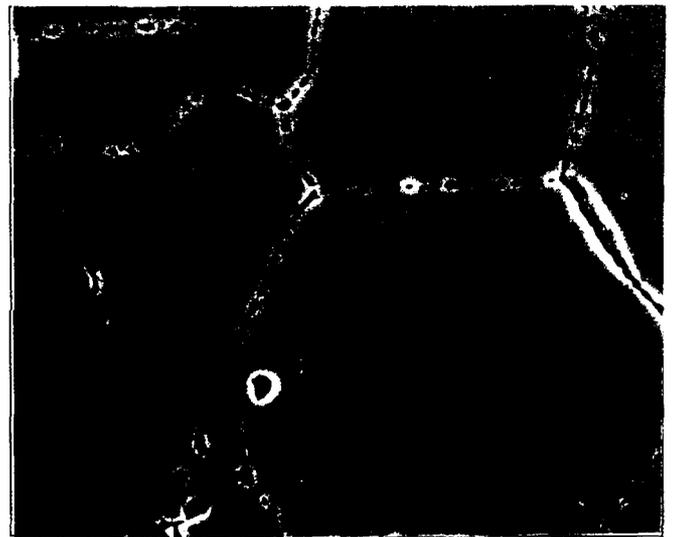
Figure 66b : Examens micrographiques des échantillons traités thermiquement à 1410°C pendant 5 mn, 60 mn, 300 mn



E 5 mn



F 30 mn



G 60 mn



H 300 mn



I 600 mn

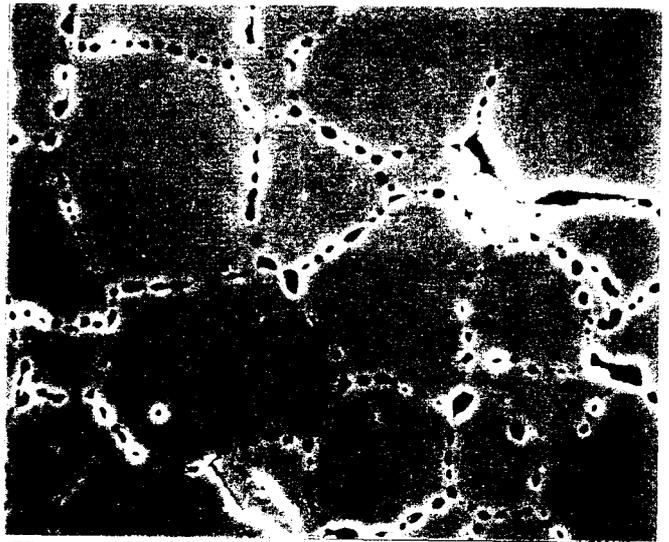
Figure 66c : Examens micrographiques des échantillons traités thermiquement à 1545°C pendant 5 mn, 30mn, 60 mn, 300 mn, 600 mn

10  $\mu$ m



J

5 mn



K

60 mn

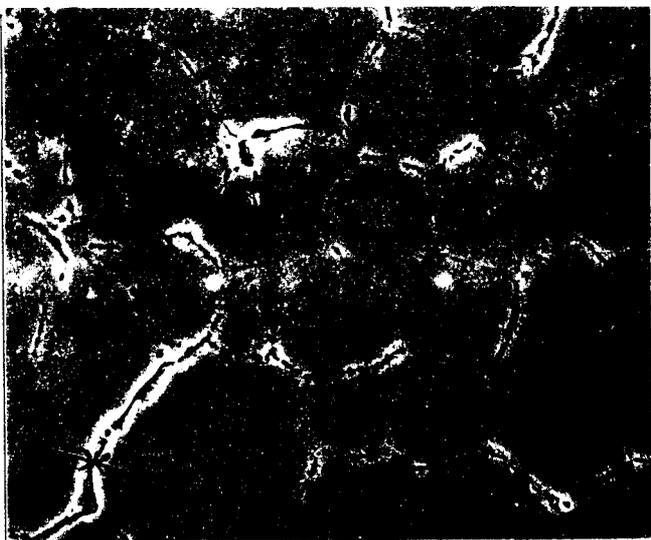


L

300 mn

10  $\mu$ m

Figure 66d : Examens micrographiques des échantillons traités thermiquement à 1630°C pendant 5 mn, 60 mn, 300 mn .



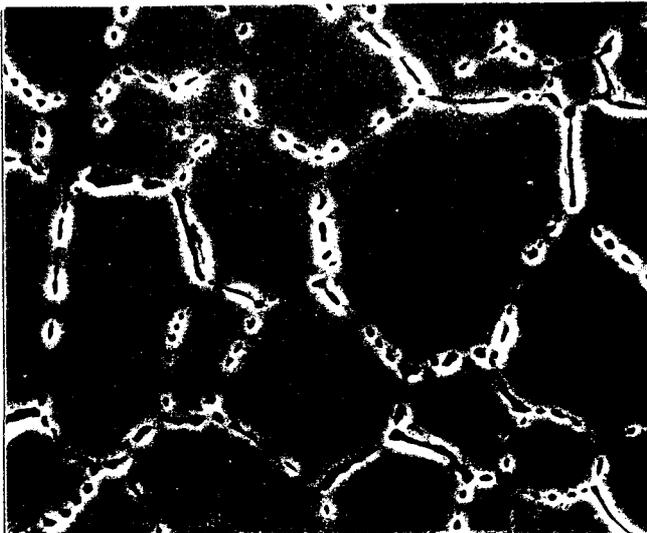
M

5 mn



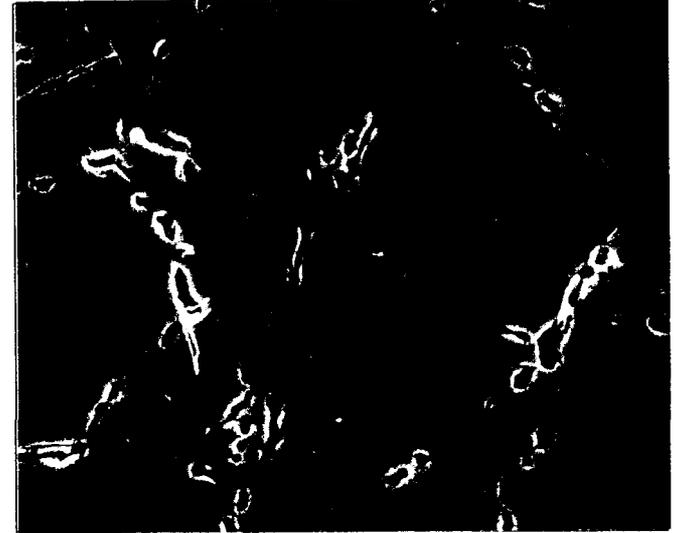
N

15 mn



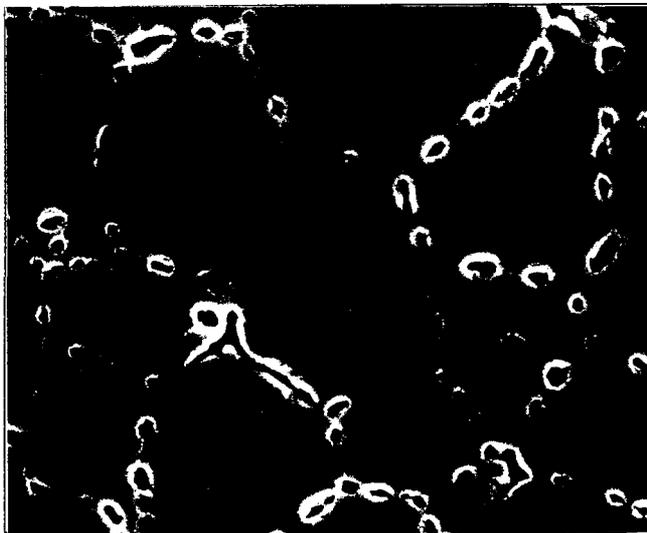
O

30 mn



P

60 mn



Q

300 mn



R

600 mn

10  $\mu$ m

Figure 66e : Examens micrographiques des échantillons traités thermiquement à 1715°C pendant 5 mn, 15 mn, 30mn, 60 mn, 300 mn, 600 mn

1715°C pendant 15 mn pris à titre d'exemple, les joints de grains sont parfaitement dessinés ce qui n'est pas le cas sur la photo A d'un échantillon irradié et non traité (Figure 65).

Pour chaque traitement effectué, les examens au M.E.B. ont permis de préciser cette formation de bulles intergranulaires. Par contre, les bulles intragranulaires, de taille plus petite, n'ont pu être observées que pour quelques traitements à très hautes températures.

#### I.1.1. Observations des bulles intergranulaires

Les micrographies effectuées au M.E.B. sont présentées sur la Figure 66.

A 1410°C-5 mn et 1130°C-300 mn, on distingue à peine quelques joints. Pour le reste des traitements thermiques, on observe une apparition très rapide des bulles intergranulaires. Aux températures supérieures à 1545°C, les bulles sont en quantité suffisante pour révéler tous les joints de grains en 5 minutes.

Pour décrire l'évolution des bulles en fonction du temps de traitement et de la température, quelques critères d'observations ont été retenus : la taille et la forme des bulles, le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains et les réseaux de bulles.

##### a) *Taille et forme des bulles*

Les bulles sont de forme lenticulaire, de taille inférieure au  $\mu\text{m}$ . Avec l'augmentation du temps de traitement et de la température, elles tendent à s'allonger et à s'élargir. Pour toutes les températures de traitement, dès 5 minutes de traitement (excepté à 1130°C-300 mn et 1410°C-5 mn), les bulles apparaissent sur les micrographies. On observe que, jusqu'à environ 60mn, la taille des bulles augmente très nettement. Puis, elle continue d'évoluer plus lentement avec le temps. En outre, avec l'augmentation du temps de traitement, on n'observe pas l'existence de toutes petites bulles, qui pourraient traduire une germination en continu. Enfin, plus la température est élevée, plus les bulles sont grosses.

##### b) *Nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains*

Les micrographies montrent qu'avec le temps et la température, **le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains diminue** et l'espacement entre les bulles augmente.

##### c) *Réseaux de bulles*

Les micrographies montrent que les bulles peuvent coalescer pour former des réseaux (exemple photo M, 1715°C-5mn, zone repérée entre les flèches).

$N_L(P)$	Température (°C)			
	1410	1545	1630	1715
5	*	1700 +/-86	1320 +/-76	1052 +/-46
15				870 +/-49
30		1078 +/-99		655 +/-71
60	1015 +/-97	962 +/-92	788 +/-70	585 +/-83
120				520 +/-35
300	890 +/-56	885 +/-62	710 +/-76	492 +/-32
600		733 +/-55		464 +/-48

Tableau 24 : Nombre de bulles pour un mm de longueur de joint de grains en fonction du temps de traitement et de la température

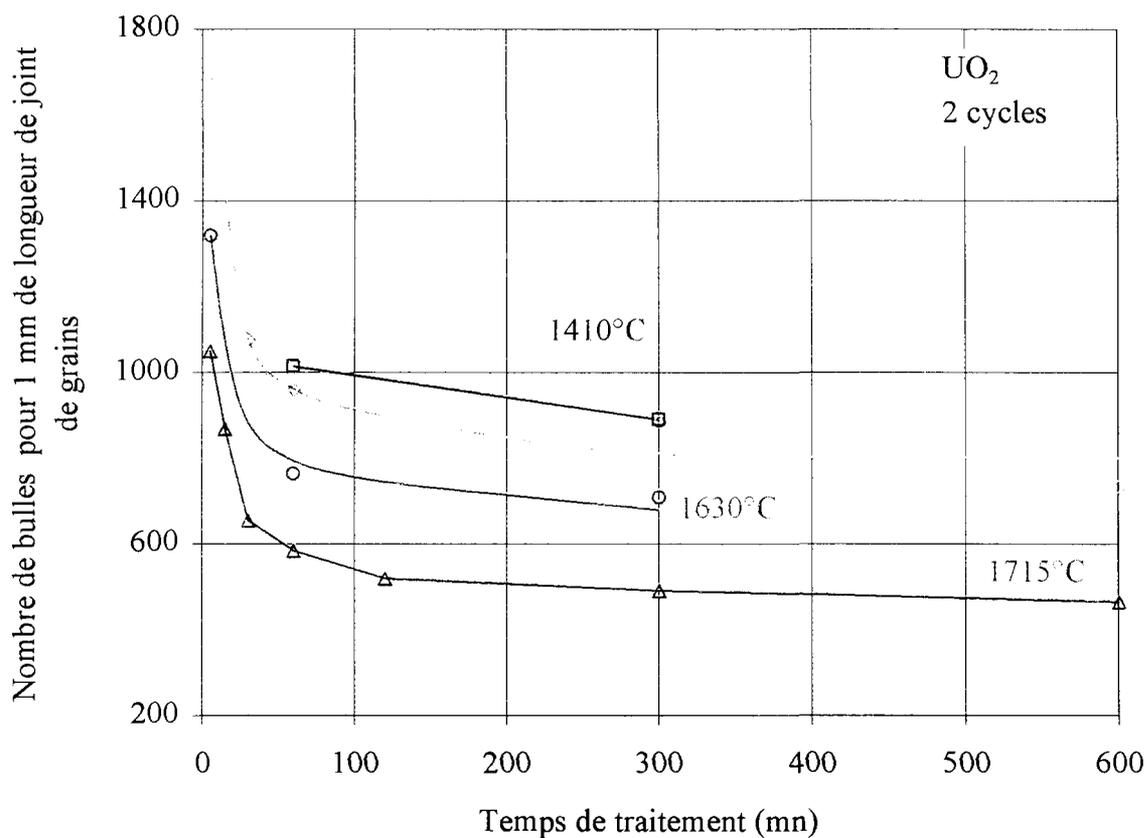


Figure 67 : Nombre de bulles pour un mm de longueur de joint de grains, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

I.1.2. Analyse quantitative des micrographies

On a vu que, pour une température de traitement donnée, on observe une diminution du nombre de bulles et une augmentation du rayon moyen des bulles. Nous avons, ci-après, précisé ces observations.

a) *Nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains*

Les micrographies ont servi de support, pour compter les bulles intergranulaires, sur une longueur de joint de grains de 50  $\mu\text{m}$ . Trois parcours par photo ont été choisis au hasard et deux mesures ont été effectuées pour chaque trajet. La moyenne de ces mesures, ramenée à une longueur de joint de grains de 1 mm, est présentée dans le Tableau 24. Le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains mesuré est appelé  $N_L(P)$ .

Les points expérimentaux sont représentés sur la Figure 67, en fonction du temps de traitement thermique, pour différentes températures. Les courbes quantifient les observations effectuées et ont une allure identique, pour chaque température : durant une première phase jusqu'à 60 mn, le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains diminue considérablement ; puis on observe un ralentissement de la diminution des bulles. En outre, pour un temps de traitement donné, le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains diminue avec la température.

b) *Taille des bulles*

On déduit des mesures du nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains  $N_L(P)$  et des mesures du gonflement  $G$  par analyse d'images, l'évolution du rayon  $r$  de la surface moyenne du joint occupée par les bulles lenticulaires ( $r$  est défini sur la Figure 11 du chapitre 2).

• Relation entre  $r$ ,  $N_L(P)$  et  $G$

Le gonflement intergranulaire est égal au produit de la concentration volumique en bulles intergranulaires par le volume moyen d'une bulle lenticulaire :

$$G = N_v(P) V \quad (\text{V. 1})$$

Or, la concentration en bulles intergranulaires  $N_v(P)$  et le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains  $N_L(P)$  sont liés par l'équation (III. 8) du chapitre 3, rappelée ci-dessous :

$$N_v(P) = \frac{2}{\ell} \frac{N_L(P)}{\rho \sin \Psi}$$

r(μm)	Température (°C)			
Temps (mn)	1410	1545	1630	1715
5				0,31
15				0,46
30				0,45
60	0,25	0,28	0,43	0,57
120				0,62
300	0,36	0,36	0,50	0,70
600		0,49		0,70

Tableau 25 : Rayon moyen des bulles, en fonction du temps de traitement et de la température, obtenu à partir des mesures par analyse d'images à un grandissement de 2000

r(μm)	Température (°C)			
temps (mn)	1410	1545	1630	1715
5		0,18	0,26	0,33
15				0,41
30		0,36		0,52
60	0,27	0,33	0,46	0,57
120				0,60
300	0,32	0,42	0,49	0,69
600		0,51		0,68

Tableau 26 : Rayon moyen des bulles, en fonction du temps de traitement et de la température, obtenu à partir des mesures par analyse d'images à un grandissement de 3500

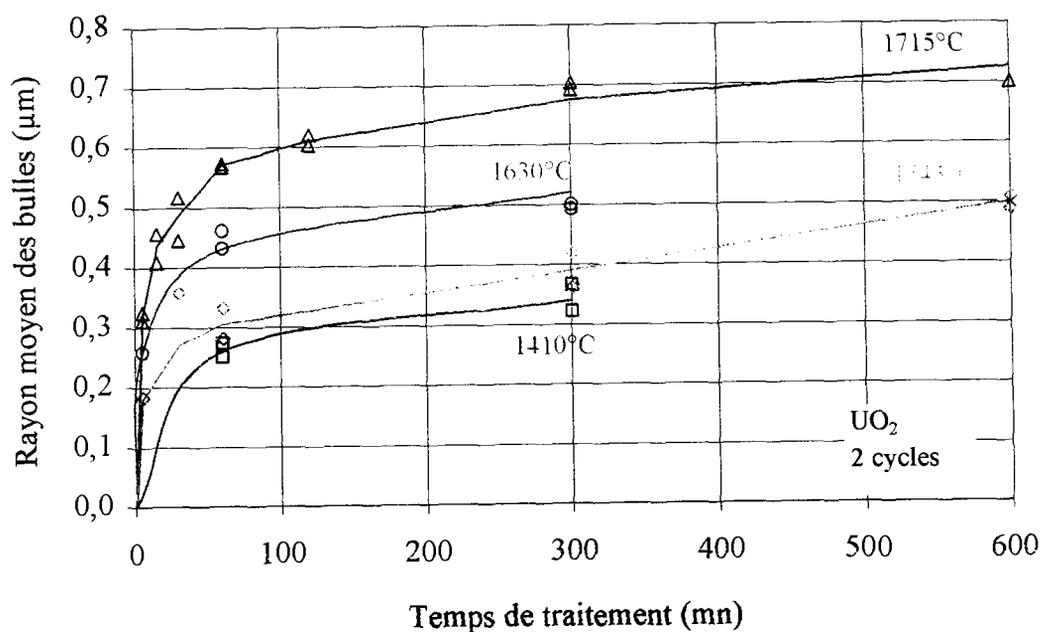


Figure 68 : Rayon de la surface du joint occupé par une bulle lenticulaire en fonction du temps de traitement pour différentes températures

où  $\rho$  est le rayon de courbure moyen et  $\Psi$  l'angle de raccordement de deux moitiés de la cavité.

En remplaçant le volume d'une bulle lenticulaire par l'expression (II. 4) du chapitre 2 et  $N_v$  par (III. 8) du chapitre 3 rappelée ci-dessus dans l'équation (V.1), on obtient le rayon de courbure de la bulle :

$$\rho = \left( \frac{\bar{\ell} \sin \Psi G}{2 F_v N_L(P)} \right)^{1/2} \quad (V. 2)$$

Or le rayon moyen  $r$  de la surface du joint mangée par la cavité est donné par :

$$r = \rho \sin \Psi$$

d'où

$$r = \left( \frac{\bar{\ell} \sin \Psi G}{2 F_v N_L(P)} \right)^{1/2} \sin \Psi \quad (V. 3)$$

Comme on le verra dans la partie I.1.4, l'intercept moyen  $\bar{\ell}$  reste quasiment constant avec l'irradiation ou les traitements thermiques. Il est pris égal à la taille initiale du grain, avant irradiation et avant traitement thermique, soit 9,3  $\mu\text{m}$ . D'autre part, l'angle  $\Psi$  de raccordement des deux moitiés de la cavité vaut environ 56° [10].  $F_v$ , fonction de  $\Psi$ , est donné par l'égalité (II. 6) du chapitre 2.

- Evolution de la taille des bulles

Les résultats du calcul de  $r$  sont présentés dans le Tableau 25 et le Tableau 26. La courbe d'évolution de la taille des bulles intergranulaires, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures, est présentée sur la Figure 68. On constate bien, que la taille des bulles croît nettement jusqu'à environ 60 mn, avec une seconde phase où elle évolue plus lentement. Plus la température est importante, plus la taille est élevée.

K. Une et S. Kashibe [13] ont mesuré des tailles de bulles, d'un combustible  $\text{UO}_2$  irradié (25 GWj/tU) et traité thermiquement à 1800°C pendant 5h, qui varient entre 0,6 et 0,8  $\mu\text{m}$ . Ces valeurs sont comparables à celles que nous avons obtenues à 1715°C pendant 5 heures, présentées sur la Figure 68.

### I.1.3. Observation des bulles intragranulaires

**Les bulles intragranulaires ne s'observent qu'à partir d'une température de 1715°C.** Présentées sur la Figure 69, elles sont sphériques et d'autant plus grosses que le temps est plus grand.



Figure 69 : Formation de bulles intragranulaires d'un combustible  $UO_2$  irradié (25 GWj/tU) lors d'un traitement thermique à 1715°C

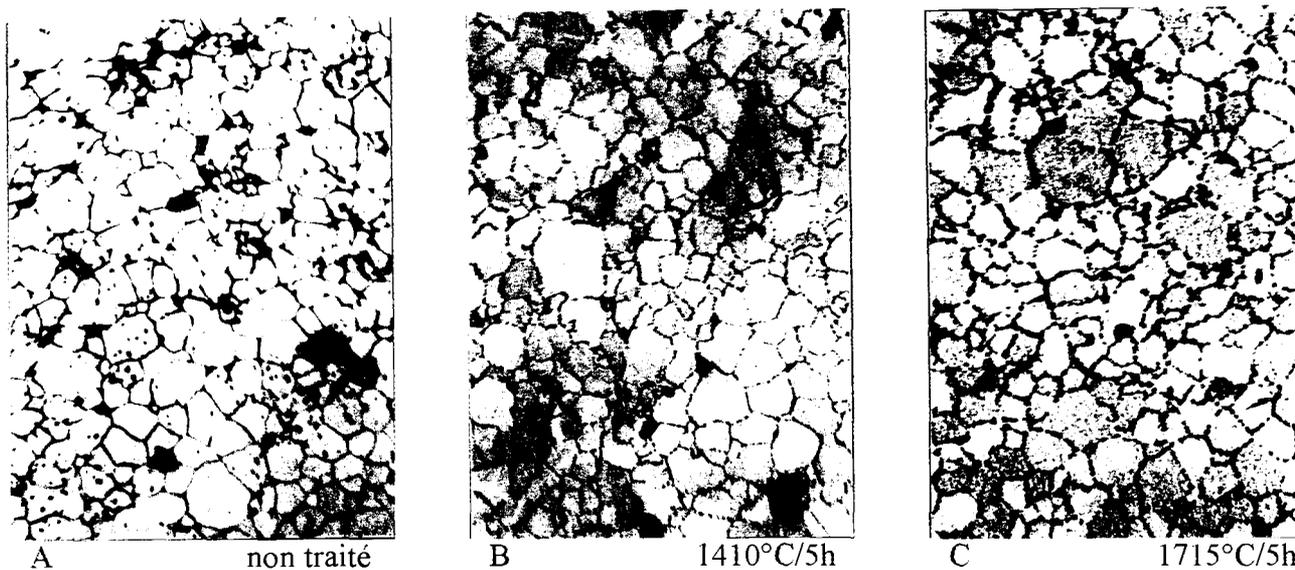
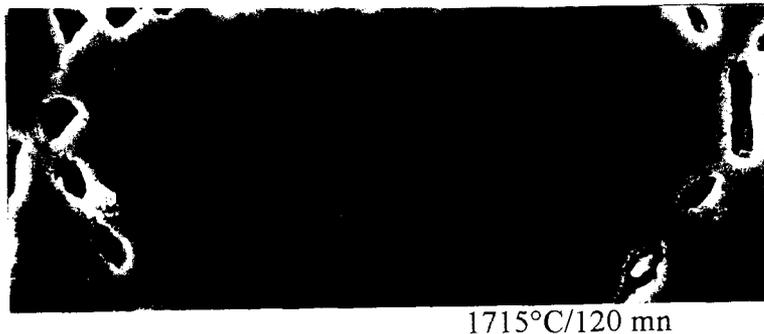


Figure 70 : Taille des grains avant et après traitements thermiques à 1410°C et 1715°C (attaque chimique)

	Taille des grains (μm)
Etat initial	$9,3 \pm 0,3$
Etat irradié	$9,2 \pm 0,3$
Etat irradié et traité thermiquement à 1410°C/5 h	$9,1 \pm 0,3$
Etat irradié et traité thermiquement à 1715°C/5 h	$9,5 \pm 0,3$

Tableau 27 : Taille des grains de l'échantillon irradié, non traité et de deux échantillons irradiés, traités thermiquement

#### I.1.4. Taille des grains

La révélation des joints de grains a été effectuée sur trois échantillons qui couvrent l'ensemble des essais : un échantillon irradié, non traité, un échantillon irradié traité thermiquement à 1410°C pendant 5 heures et un autre à 1715°C pendant 5 heures. Ils ont été attaqués chimiquement par une solution composée d'eau, d'eau oxygénée et d'acide sulfurique pour révéler la structure des grains (Figure 70). La mesure de la taille des grains a été effectuée, selon la norme ASTM E112-88, par la méthode des intercepts circulaires. Cela consiste à compter le nombre de joints de grains coupés par trois cercles dont la somme des circonférences est 500 mm. La mesure est réalisée sur 5 zones différentes ne se chevauchant pas sans critères particuliers. Les résultats sont identiques. Les tailles moyennes des grains obtenues sont comparées dans le Tableau 27. A 1715°C, la mesure montre une très faible augmentation de la taille du grain, mais qui reste de l'ordre de l'incertitude de mesure. **On considérera donc que la taille de grains n'évolue quasiment pas, pour tous les traitements effectués.**

La taille moyenne du grain à 1715°C-5h a aussi été mesurée par la technique des intercepts linéaires de l'analyse d'images.

De même, S. Kashibe et K. Une [48] n'ont pas observé d'évolution de la taille des grains sur des échantillons équivalents, avant et après traitement thermique à 1600°C et 1800°C pendant 5 heures.

### I.2. Echantillons fracturés

En complément des micrographies sur échantillons polis, un échantillon témoin, un échantillon traité thermiquement à 1410°C pendant 5 heures et un autre à 1715°C pendant 5 heures ont été fracturés et analysés au M.E.B..

#### I.2.1. Préparation des échantillons

Des disques de combustible de 3 mm d'épaisseur, tronçonnés dans les échantillons traités, ont été enrobés dans de l'araldite dans un tube en Plexiglas. Ils ont ensuite été collés dans un support, puis fracturés par un système de guillotine (Figure 71). Ils ont été décontaminés par bains successifs dans de l'alcool avec agitation aux ultrasons. Un dépôt d'or a enfin été effectué afin de rendre l'échantillon conducteur. L'état de surface des échantillons fracturés est présenté sur la Figure 72.

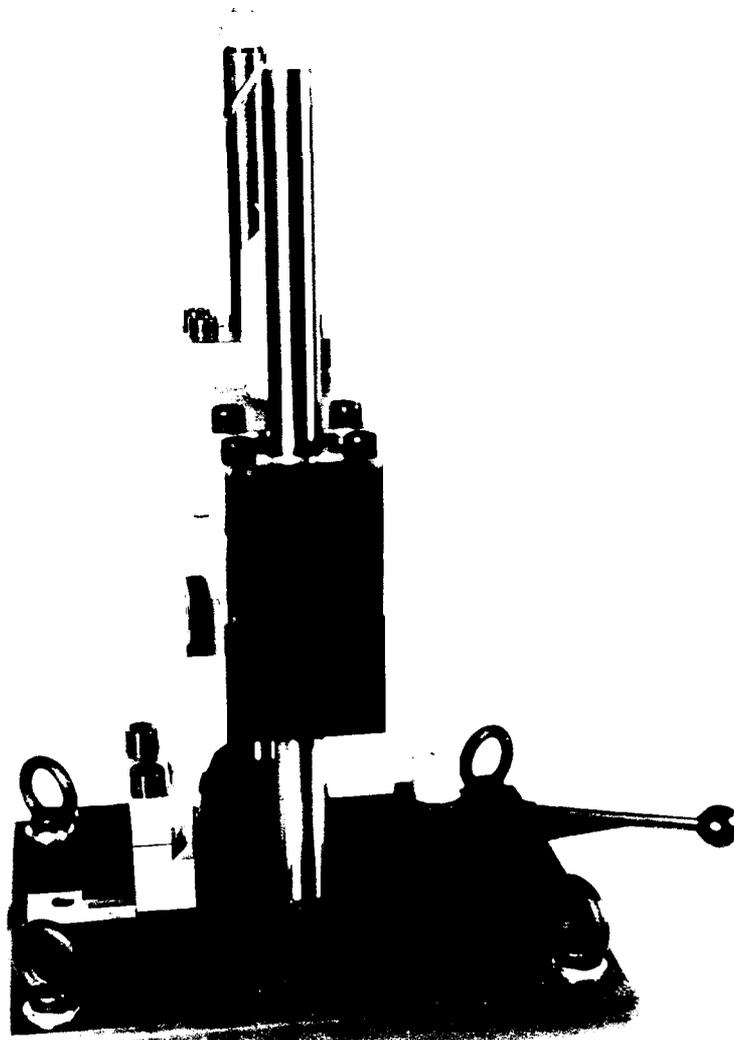


Figure 71 : Machine de fracturation des échantillons



Figure 72 : Etat de surface d'un échantillon fracturé



A  
Non traité thermiquement

5  $\mu$ m B  
Traité thermiquement  
1400°C/5h



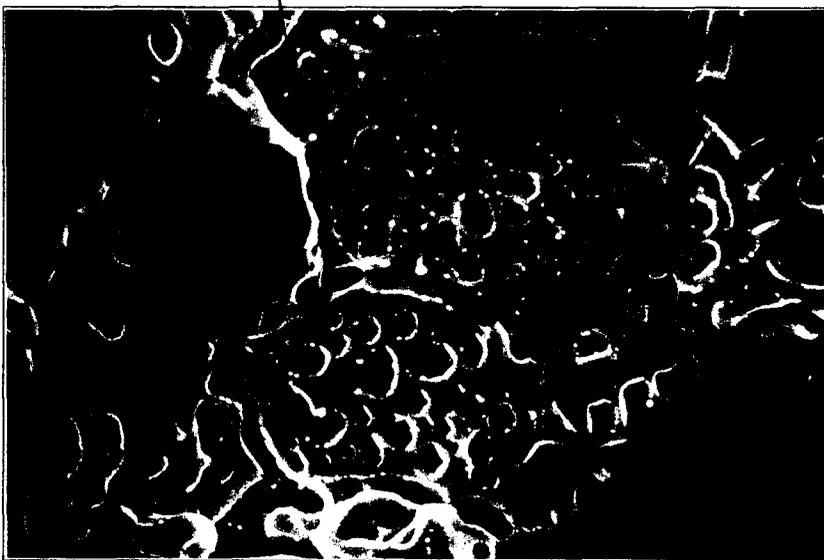
Bulles intergranulaires  
non interconnectées

Bulles interconnectées  
communiquant avec les  
tunnels

5  $\mu$ m

Formation de tunnels  
sur les arêtes des grains

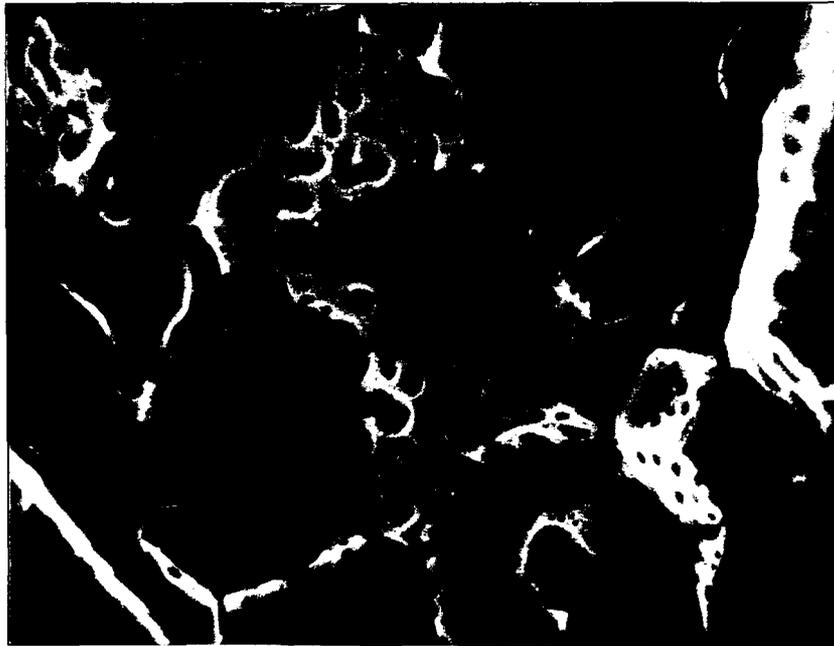
Porosité initiale  
traversée par un tunnel



C  
Traité thermiquement  
1700°C/5h

5  $\mu$ m

Figure 73 : Examen au M.E.B. des fractures d'échantillons (25 GWj/tU)  
non traités et traités thermiquement :  
Bulles intergranulaires - Interconnexion des bulles - Tunnels



5  $\mu\text{m}$

Traité thermiquement  
1400°C/5h

Figure 74 : Hétérogénéité du faciès des joints de grain  
(examen au M.E.B. d'un échantillon fracturé (25 GWj/tU)  
traité thermiquement à 1410°C/5h).



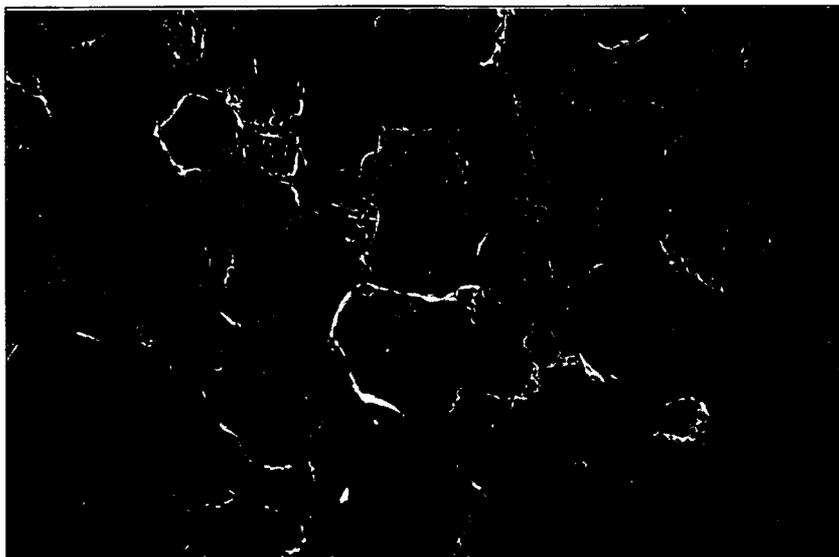
A  
Non traité thermiquement

10  $\mu$ m

B  
Traité thermiquement  
1410°C/5h



10  $\mu$ m



C  
Traité thermiquement  
1715°C/5h

10  $\mu$ m

Figure 75 : Faciès de rupture des fractures d'échantillons (25 GWj/tU)  
non traités et traités thermiquement



A

Non traité thermiquement



B

Traité thermiquement 1715°C/5h

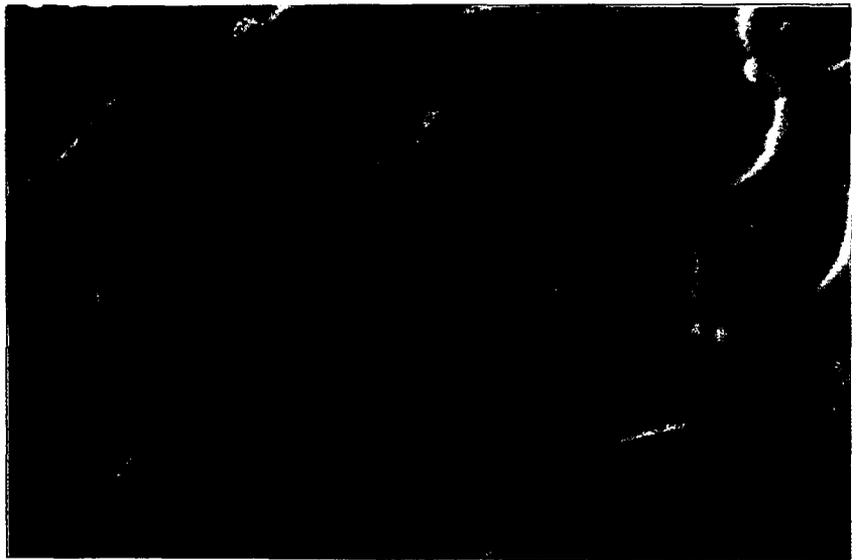
Figure 76 : Formation de bulles intragranulaires dans un échantillon (25 GWj/tU) fracturé traité thermiquement à 1715°C pendant 5 heures



A  
Non traité thermiquement

1  $\mu$ m

B  
Traité thermiquement  
1410°C/5h



1  $\mu$ m



C  
Traité thermiquement  
1715°C/5h

1  $\mu$ m

Figure 77 : Examen de précipités de produits de fission sur des fractures d'échantillons (25 GWj/tU) non traités et traités thermiquement

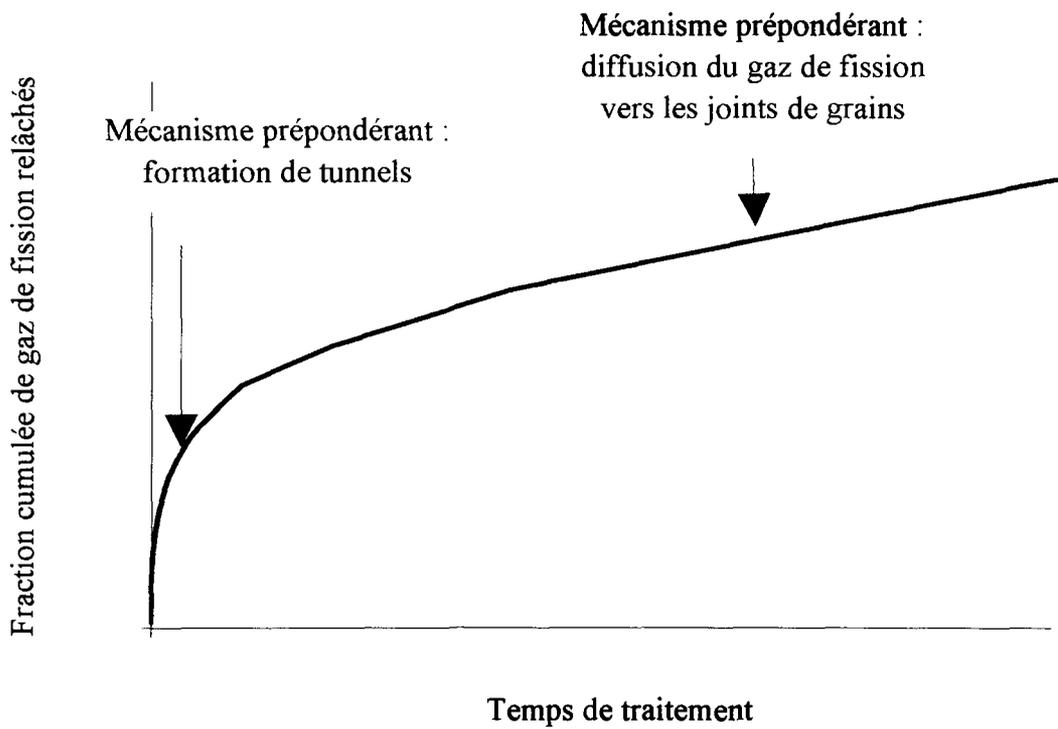


Figure 78 : Présentation schématique de la cinétique de relâchement des gaz de fission, lors d'un traitement thermique

### I.2.2. Observations

On constate, comme attendu, la présence de bulles intergranulaires de forme lenticulaire, d'autant plus grosses que la température est élevée et des réseaux de bulles sur les arêtes communes à plusieurs grains (tunnels) qui convergent aux points triples (Figure 73). A 1715°C, les bulles intergranulaires sont plus interconnectées qu'à 1410°C. **Ces tunnels sont parfois en communication avec des bulles interconnectées des faces des grains.** On observe aussi **des bulles non interconnectées sur les faces des grains** qui sont d'autant plus grosses, que la température est plus élevée. **Les tunnels traversent parfois la porosité initiale** (Photo C de la Figure 73).

L'aspect des joints de grains est très hétérogène. La Figure 74 montre une surface du joint de grains où les bulles sont très peu interconnectées et à proximité une face du grain où au contraire, elles sont très interconnectées.

La rupture de l'échantillon irradié, non traité est plutôt intragranulaire alors que celle des échantillons irradiés, traités thermiquement, est mixte à la fois intragranulaire et intergranulaire. Les faciès de rupture des échantillons sont présentés sur la Figure 75.

A 1715°C, on observe des bulles intragranulaires sphériques de diamètre moyen entre 20 nm et 150 nm. L'analyse de la Figure 76 révèle une zone dépourvue de bulles intragranulaires à proximité du joint de grains.

La présence de précipités de produits de fission, fixés sur les grosses bulles à la surface et sur les arêtes de grains peut aussi être observée (Figure 77). Ils sont sphériques de diamètre compris entre 50 nm et 250 nm. Ils sont d'autant plus gros que la température est élevée.

## II. INTERPRETATION DU RELACHEMENT ISOTHERME DES GAZ DE FISSION

Les mécanismes contrôlant le relâchement des gaz de fission lors d'un traitement thermique ont bien été identifiés par différents auteurs [13][47][48]. Ceux-ci ont mis en évidence deux phénomènes successivement prépondérants (Figure 78) :

- dans un premier temps, un relâchement rapide des gaz de fission dû à l'interconnexion des bulles intergranulaires et formation de tunnels débouchant sur les

surfaces libres, permettant ainsi une libération massive des gaz de fission vers l'extérieur ; c'est le mécanisme prépondérant dans la première phase du relâchement de gaz de fission, puis, il devient négligeable durant le traitement thermique ;

- dans un deuxième temps, un relâchement contrôlé par la diffusion des gaz de fission vers les joints de grains où les atomes, qui rencontrent un tunnel formé par des bulles interconnectées, sont immédiatement relâchés vers l'extérieur. Ce mécanisme, masqué tout d'abord par le relâchement massif dû à la formation de tunnels, devient prépondérant par la suite. On entre alors dans la deuxième phase du relâchement.

Sur la base de ces deux mécanismes de relâchement proposés par la littérature, nous interprétons nos résultats en commençant par le relâchement contrôlé par la diffusion.

## **II.1. Etude du relâchement des gaz de fission par diffusion**

### II.1.1. Détermination du mécanisme de transport du gaz vers les joints de grains

Le transport des atomes de gaz de fission vers les joints de grains peut s'effectuer par diffusion atomique et par migration des bulles intragranulaires. Ce dernier mécanisme, d'après la littérature, ne s'active qu'à des températures supérieures à 1545°C [5][13] [33].

La question qui peut se poser est de savoir, si le mécanisme de diffusion atomique est prépondérant sur toute la gamme de température étudiée (1130°C-1715°C), ou, s'il devient négligeable par rapport à la migration des bulles à très hautes températures.

Supposons tout d'abord que sur toute la gamme de températures étudiées, la diffusion atomique des gaz de fission soit le mécanisme prépondérant, qui contrôle le relâchement durant sa deuxième phase. Nous pouvons alors confronter les points expérimentaux, au modèle théorique du relâchement des gaz de fission par diffusion atomique, présenté dans le chapitre 2, déterminer le coefficient de diffusion empirique  $D'$ , pour chacune des températures et vérifier si l'évolution de  $D'$  avec l'inverse de la température suit une loi d'Arrhénius, avec une énergie d'activation constante sur toute la gamme de température. Cela devrait nous permettre de conclure quant à la validité de l'hypothèse effectuée.

#### *a) Confrontation du modèle avec les résultats relatifs au relâchement du Xénon*

La comparaison a été effectuée sur les points expérimentaux du relâchement du

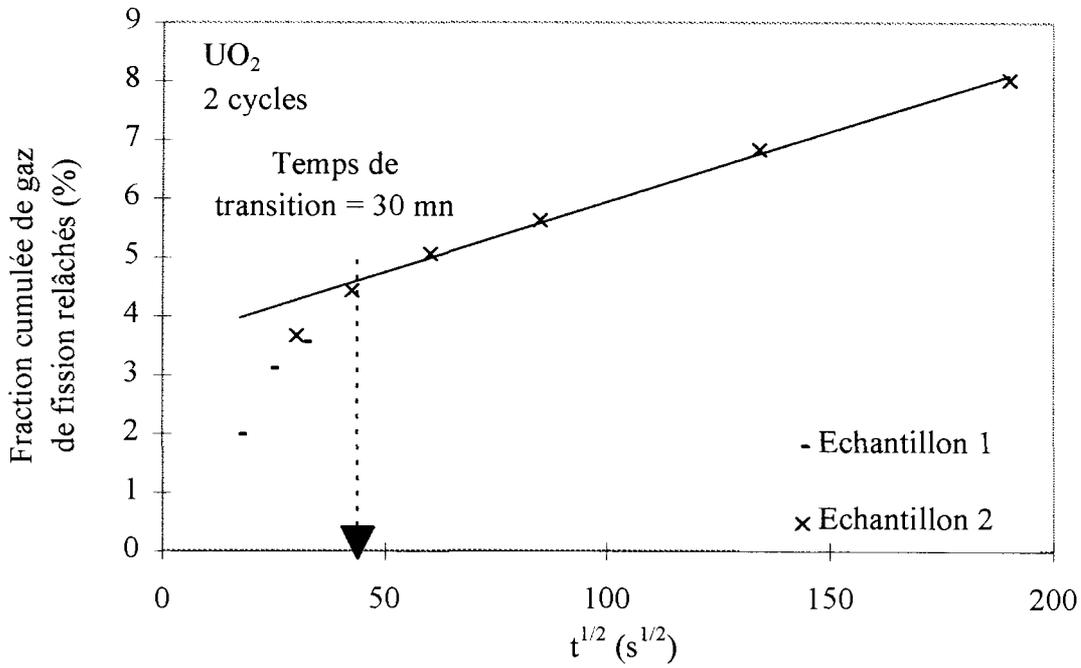


Figure 79 : Relâchement des gaz de fission pour une température de 1545°C et détermination du temps de transition à partir duquel le relâchement est contrôlé par la diffusion des atomes de gaz de fission vers les joints de grains

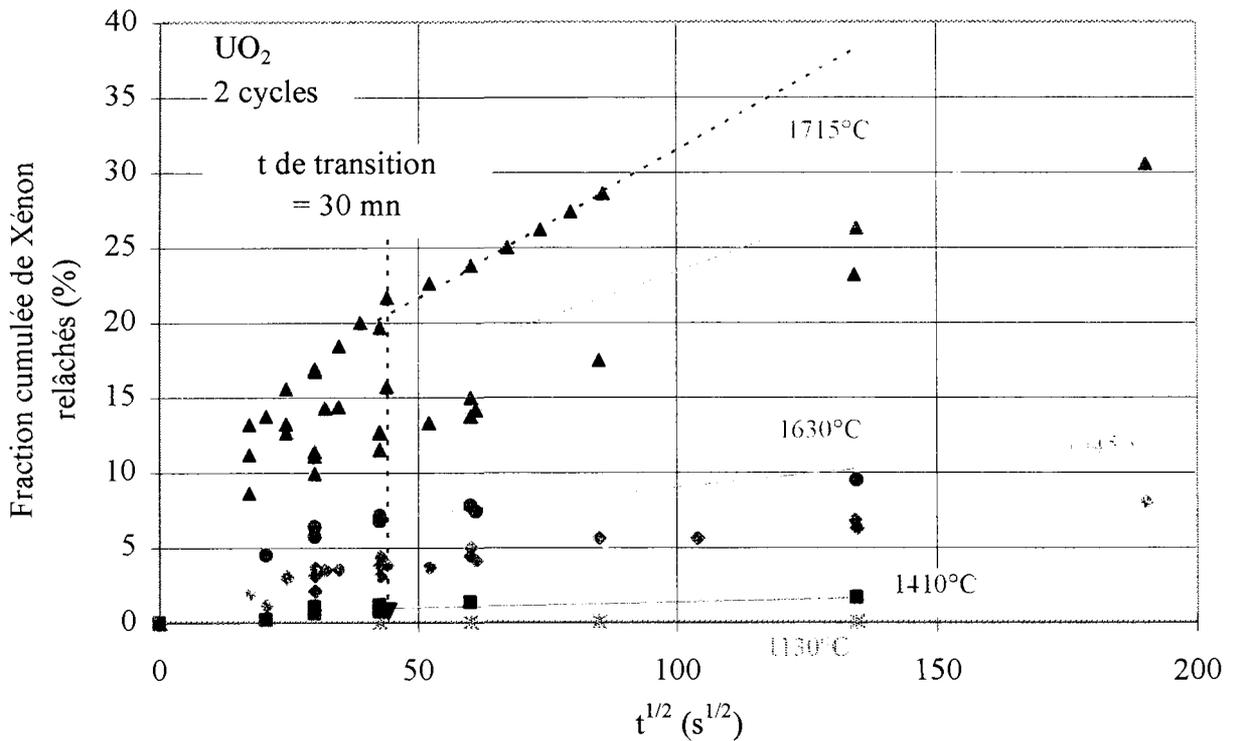


Figure 80 : Relâchement du Xénon, en fonction de la racine carrée du temps de traitement, pour différentes températures

*(au delà de 30 mn, les points expérimentaux de relâchement forment des droites avec la racine carrée du temps)*

Xénon. Sur la base des conclusions de l'analyse sur le Xénon, on a alors déterminé l'énergie d'activation apparente du Krypton.

Les points expérimentaux ont été comparés à un modèle théorique du relâchement des gaz de fission par diffusion atomique [ 29][ 30]. Ce dernier a été présenté dans le chapitre 2.

L'évolution théorique du relâchement des gaz de fission, en fonction du temps de traitement, est donnée par l'équation (II.14) du chapitre 2. Dans le cadre de cette étude, on suppose que  $D't$  est négligeable devant 1, ce qui permet de négliger le second terme par rapport au premier. Cette hypothèse sera vérifiée à la fin de cette partie, après la détermination du coefficient de diffusion empirique  $D'$ . L'équation devient :

$$f (\%) = \frac{6}{\sqrt{\pi}} \cdot (D't)^{1/2} \times 100 \quad (\text{V. 4})$$

Nous allons, tout d'abord, déterminer le temps de transition à partir duquel on considère que la cinétique du relâchement des gaz de fission est contrôlée principalement par la diffusion des gaz de fission (phase 2). L'équation (V.4) montre que ce mécanisme est caractérisé par une évolution linéaire avec la racine carrée du temps de traitement. Nous avons donc tracé, par exemple, sur la Figure 79, le relâchement du Xénon de deux échantillons particuliers qui couvrent l'ensemble des temps étudiés à une température de 1545°C en fonction de la racine carrée du temps de traitement. Après un relâchement rapide, on observe effectivement une croissance linéaire en fonction de la racine carrée du temps de traitement. Le temps de transition est d'environ 30 mn.

Les points expérimentaux du relâchement du Xénon, pour des temps de traitement supérieurs au temps de transition de 30 mn, ont alors été comparés au modèle théorique. La Figure 80 présente la cinétique du relâchement du Xénon, en fonction de la racine carrée du temps de traitement, pour différentes températures. Par comparaison à l'équation théorique de Booth, la pente des droites aux différentes températures est égale à  $6D'/\sqrt{\pi} a^2$ . La pente moyenne à 1715°C a été déterminée par une régression linéaire de tous les points à cette température. Cela permet d'en déduire le coefficient empirique de diffusion  $D'$ , pour différentes températures. Les résultats sont présentés dans le Tableau 28. Les coefficients de diffusion empiriques sont tracés, sur la Figure 81, en fonction de l'inverse de la température. Les points forment une droite sur toute la gamme de température étudiée. Ils suivent donc

Température (°C)	$D'_{Xe}(s^{-1})$
1130	7,854E-13
1410	5,309E-10
1545	9,36E-09
1630	1,131E-08
1715	1,3138E -07

Tableau 28 : Coefficient de diffusion empirique du Xénon en fonction de la température

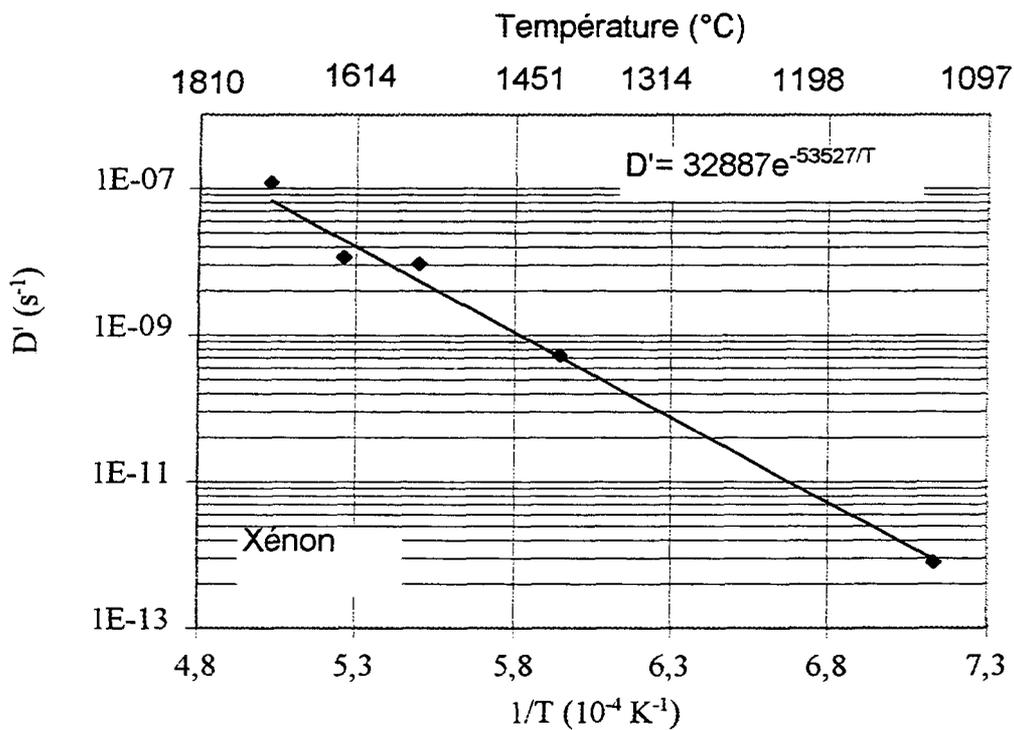


Figure 81 : Coefficient de diffusion empirique  $D'$  du Xénon, en fonction de l'inverse de la température

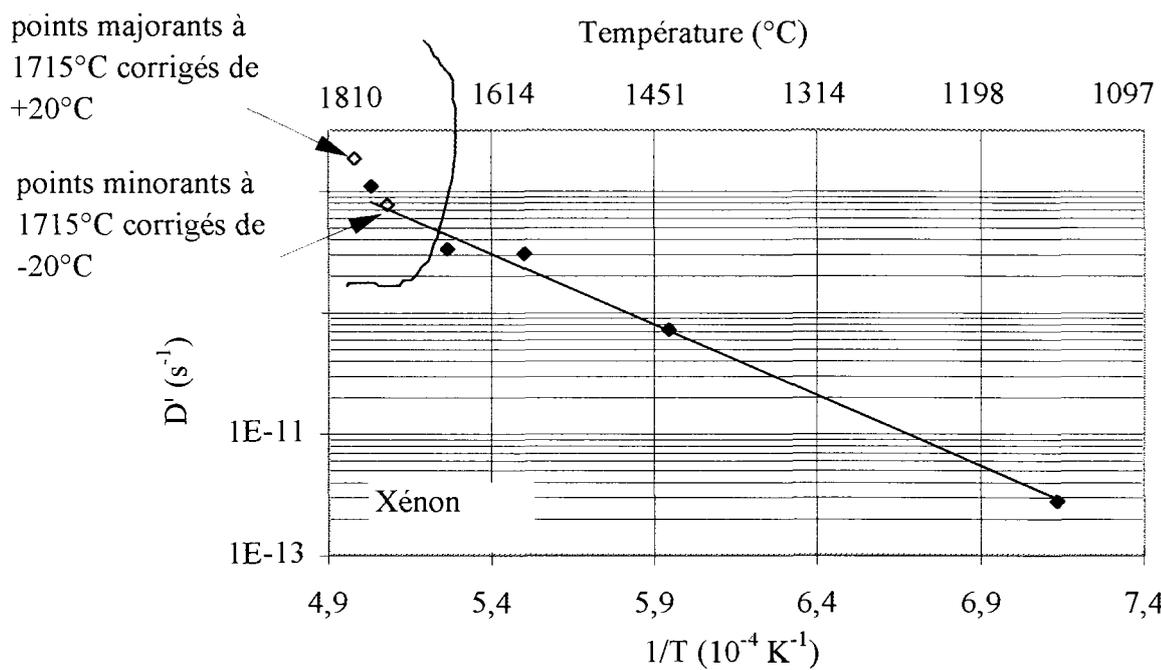


Figure 83 : Analyse de la dispersion des points expérimentaux du relâchement du Xénon à 1715°C

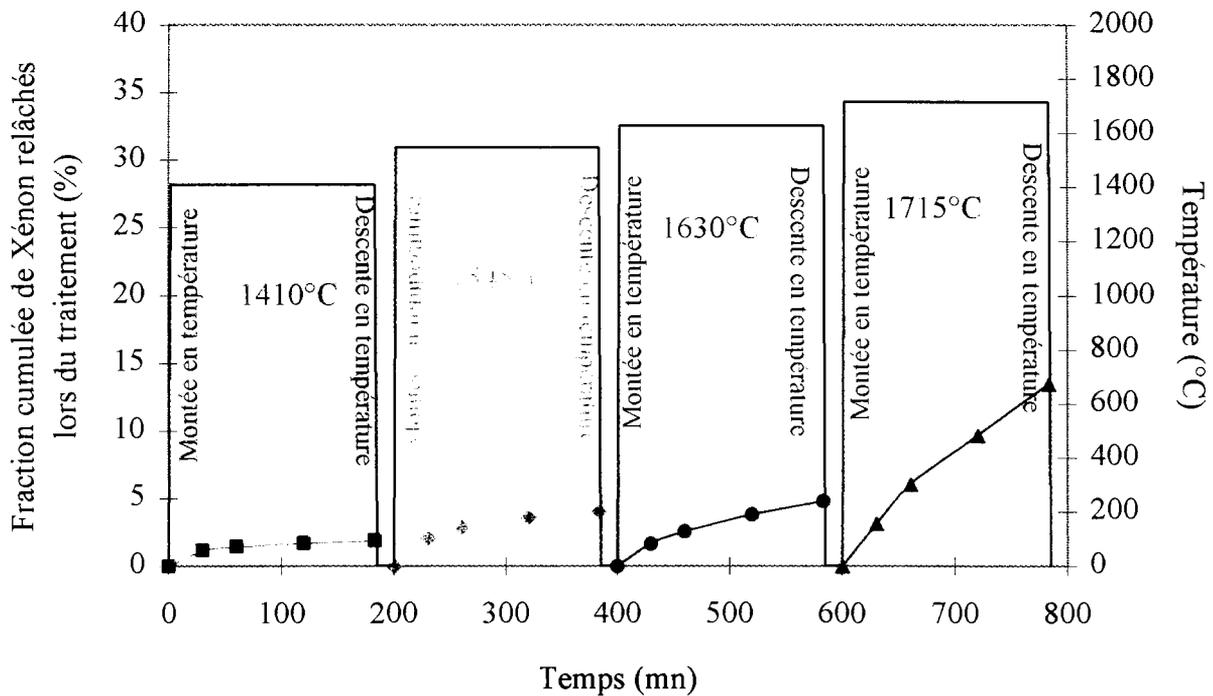


Figure 84 : Cycles de température sur un même échantillon, en fonction du temps de traitement

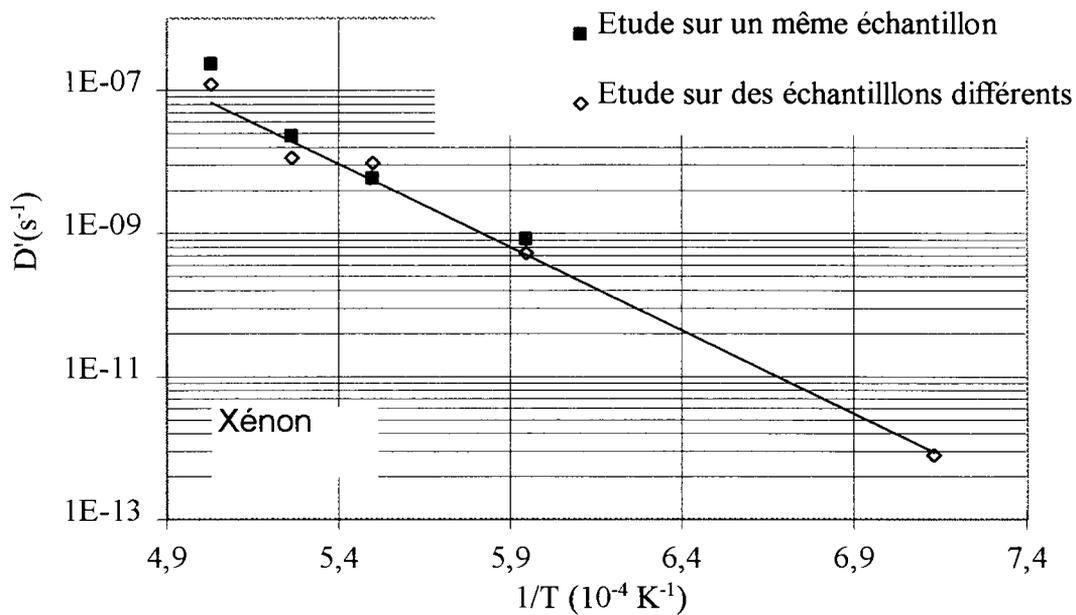


Figure 85 : Comparaison des coefficients de diffusion empiriques obtenus par deux études expérimentales différentes : des traitements thermiques sur des échantillons différents et des cycles de température sur un même échantillon

(accord des résultats des deux essais différents)

une loi d'Arrhénius de la forme :

$$D'(Xe) = D_0'(Xe) \exp\left(\frac{-E_a(Xe)}{RT}\right)$$

où  $E_a(Xe)$  est l'énergie d'activation apparente du relâchement des gaz de fission par diffusion des atomes de Xénon. La pente de cette droite correspond à  $E_a(Xe)/R$ . **L'énergie d'activation reste constante de 1130°C à 1715°C et égale à 445 kJ/mol soit 4,6 eV/atome**, ce qui montre que le même mécanisme contrôle le relâchement du Xénon sur toute la gamme de température étudiée. **Le diffusion des atomes de Xénon, étant le seul phénomène thermiquement activé de 1130°C à 1500°C (pas de diffusion des bulles intragranulaires dans cette gamme de température), reste donc prépondérant de 1500°C à 1715°C.** On rappelle qu'à 1715°C, il reste le problème de la dispersion des points expérimentaux, que l'on examinera plus loin.

**En définitive, l'équation de relâchement par diffusion du Xénon s'écrit :**

$$f_{Xe} (\%) = 61389 \times (\exp(-53527/T) \times t)^{1/2} \quad (\text{V. 5})$$

où  $f$  s'exprime en %,  $T$  en K et  $t$  en s.

Nous allons vérifier que l'approximation des temps courts se justifiaient. Le produit  $D't$  maximal correspond au coefficient de diffusion à 1715°C par le temps maximal de 10h. Cela donne  $4,7 \cdot 10^{-3}$  ce qui est, comme attendu, négligeable par rapport à 1.

#### *b) Analyse des points expérimentaux obtenues avec le Krypton*

Une analyse identique permet de déterminer le coefficient de diffusion empirique du Krypton, en fonction de la température, à partir des points expérimentaux de relâchement du Krypton (Tableau 29). La Figure 82 présente l'évolution du coefficient de diffusion empirique du Krypton, en fonction de l'inverse de la température. Les points forment une droite dont la pente, par comparaison au modèle théorique de Booth, donne une énergie d'activation de 428 kJ/mole soit 4,4 eV/atome. **Le comportement du Krypton est donc très voisin de celui du Xénon.**

#### II.1.2. Analyse de la dispersion des points à 1715°C

Dans cette partie, nous chercherons à expliquer la dispersion des points expérimentaux observés à 1715°C.

Supposons, tout d'abord, que l'écart des points expérimentaux à 1715°C provienne de l'incertitude  $\pm 20^\circ\text{C}$  de la température (I.2.1 du chapitre 4) qui, à 1715°C, a une grande

Température (°C)	$D'_{Kr} (s^{-1})$
1130	7,854E-13
1410	4,035E-10
1545	6,175E-09
1630	8,2784E-09
1715	9,548E-08

Tableau 29 : Coefficient de diffusion empirique du Krypton en fonction de la température

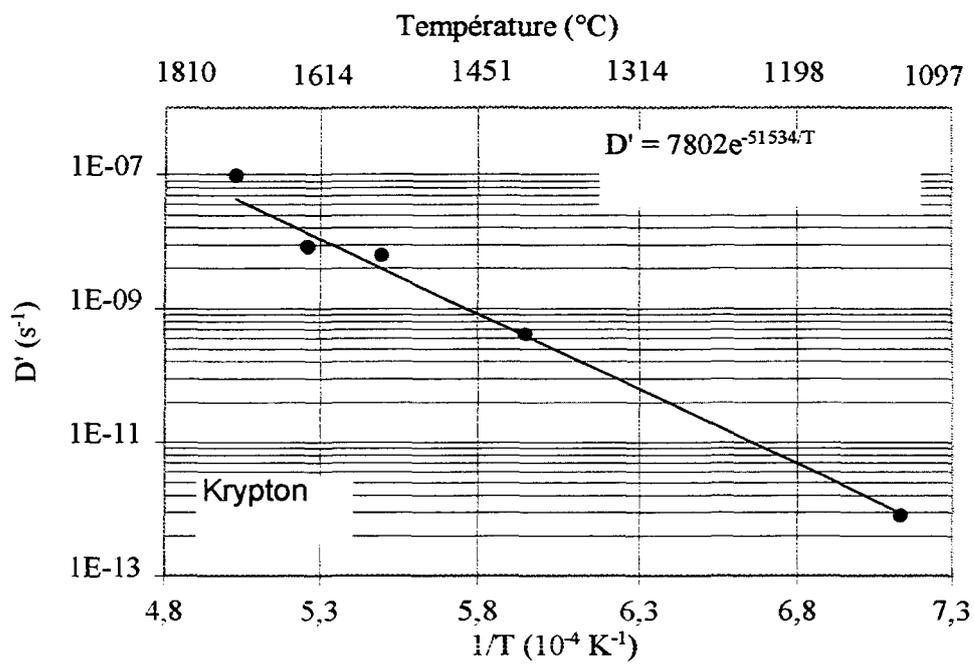


Figure 82 : Coefficient de diffusion empirique  $D'$  du Krypton, en fonction de l'inverse de la température

influence sur le relâchement des gaz de fission. Les échantillons, qui ont relâchés le plus, ont alors été traités thermiquement à 1735°C et ceux qui ont relâché le moins, à 1695°C. Une analyse identique à l'étude précédente de ces points expérimentaux minimaux et maximaux (droites en pointillés sur la Figure 80) permet de déterminer deux coefficients de diffusion empiriques  $D'$  supplémentaires de  $6,04E-8 \text{ s}^{-1}$  à 1695°C et de  $3,407E-7 \text{ s}^{-1}$  à 1735°C. Ces deux points sont comparés sur la Figure 83, à l'évolution précédente du coefficient  $D'$  en fonction de l'inverse de la température de la Figure 81. Le point à 1695°C rejoint en effet la droite. Par contre, le point à 1735°C reste très éloigné et donc montre que l'écart de température ne permet pas d'expliquer cette importante dispersion de l'ensemble des points expérimentaux. Le décollement des points **à partir d'environ 1715°C** traduit probablement **l'apparition d'un nouveau mécanisme, dont l'énergie d'activation est plus élevée. Cela rend le relâchement encore plus sensible aux fluctuations de la température d'un traitement thermique à l'autre.** A cette température, il s'agit certainement de la migration des bulles qui devient prépondérante par rapport à la diffusion atomique des gaz de fission.

### II.1.3. Etude supplémentaire sur un même échantillon

Une étude supplémentaire a été effectuée pour s'assurer que l'utilisation d'échantillons de géométrie et de surface différentes n'introduit pas de biais dans les mesures.

Pour cela, un même échantillon de masse 5,6 g a été traité suivant quatre cycles de température de 3 heures (Figure 84). Sur chaque cycle, qui correspond à une montée en température, à un palier et à un refroidissement jusqu'à température ambiante, la cinétique du relâchement a été établie par 4 prélèvements au cours du temps de traitement de 3 heures. Par comparaison au modèle théorique de Booth [ 29][ 30], on en a déduit les coefficients de diffusion empiriques en fonction de la température. La comparaison entre les points obtenus et les coefficients de l'étude précédente (Figure 85), montre que les deux essais effectués sont en accord. **L'utilisation d'échantillons différents n'a donc pas eu d'influence sur les mesures de relâchement des gaz de fission.**

## II.2. Etude du relâchement des gaz de fission par formation de tunnels

Dans cette partie, on s'intéresse à la première phase du relâchement des gaz de fission. On rappelle que ce relâchement est dû à l'interconnexion des bulles intergranulaires et la formation de tunnels, qui, lorsqu'ils atteignent une surface libre, relâchent leur gaz de

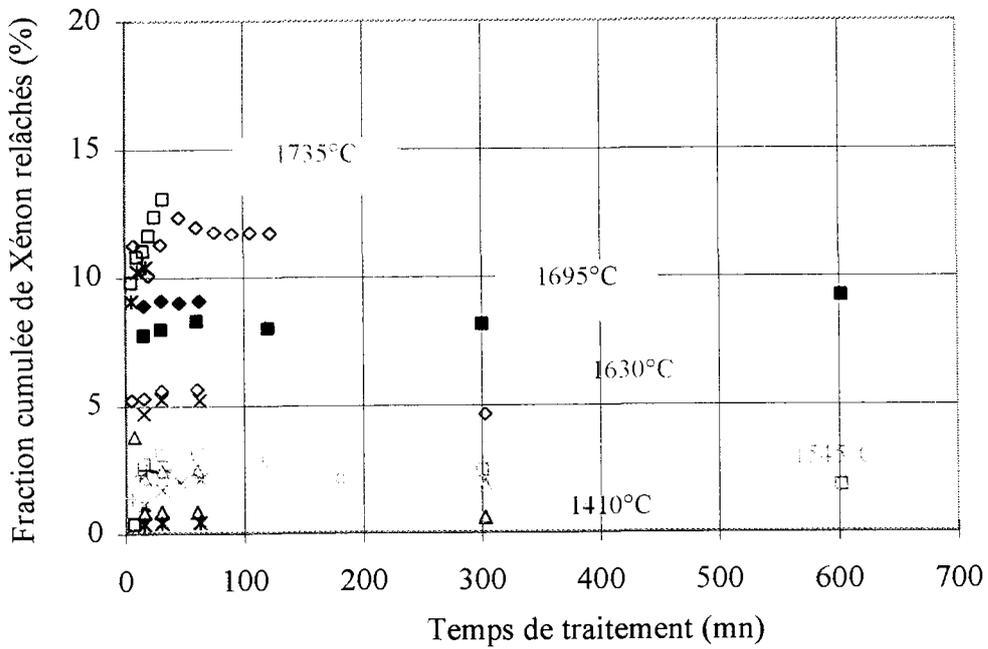
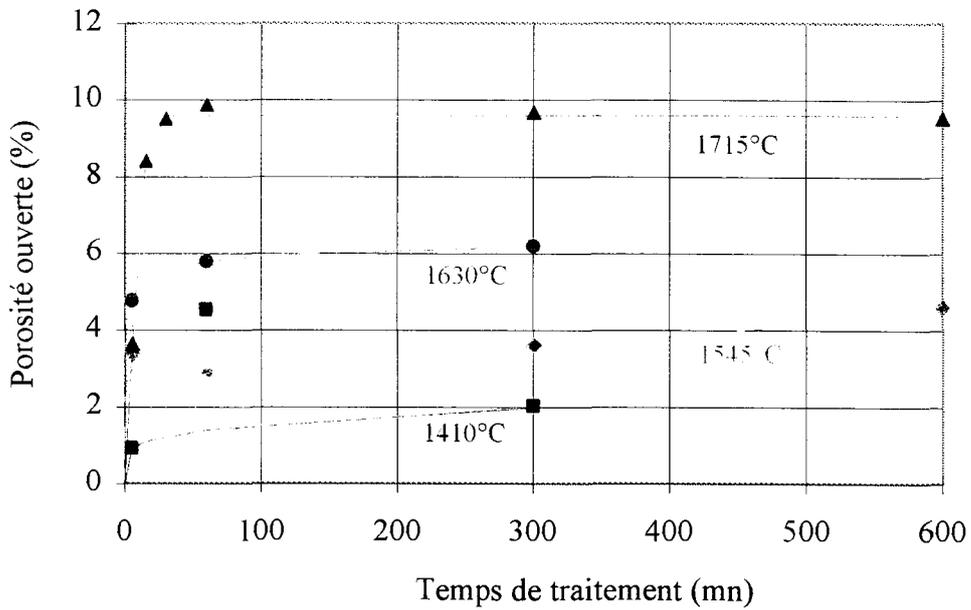


Figure 86 : Relâchement des gaz de fission par formation des tunnels, pour différentes températures

*(différence entre le relâchement total et le relâchement par diffusion atomique)*



Rappel de la Figure 63 : Porosité ouverte en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

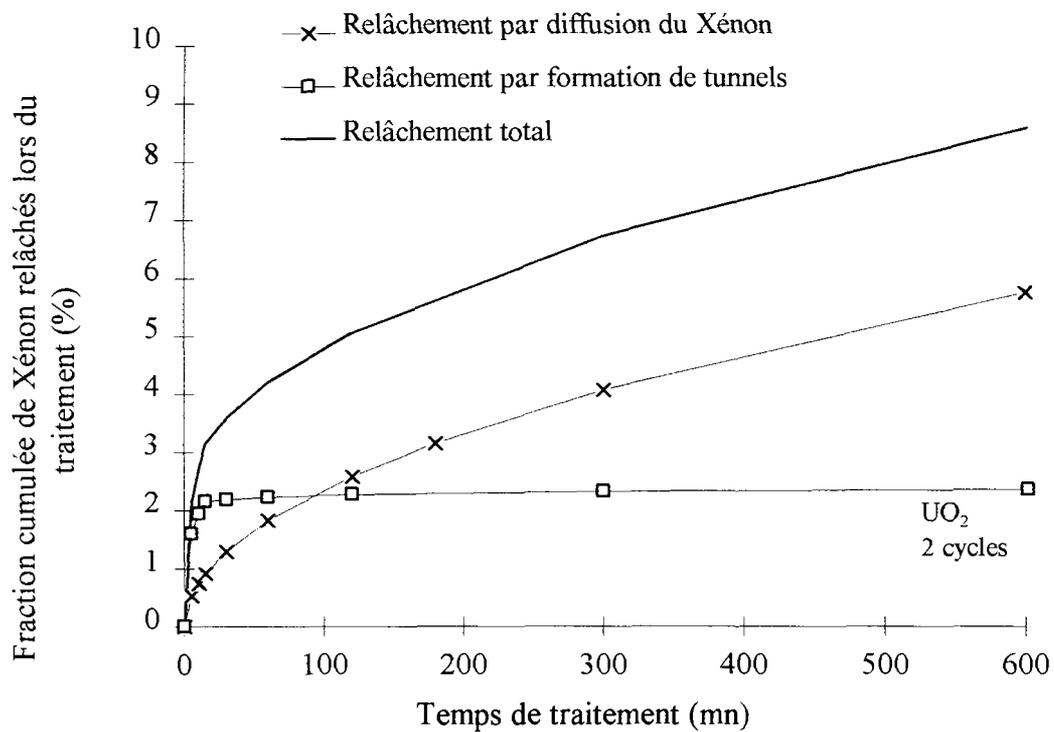


Figure 87 : Superposition des différents mécanismes du relâchement du Xénon, en fonction du temps de traitement pour une température de 1545°C

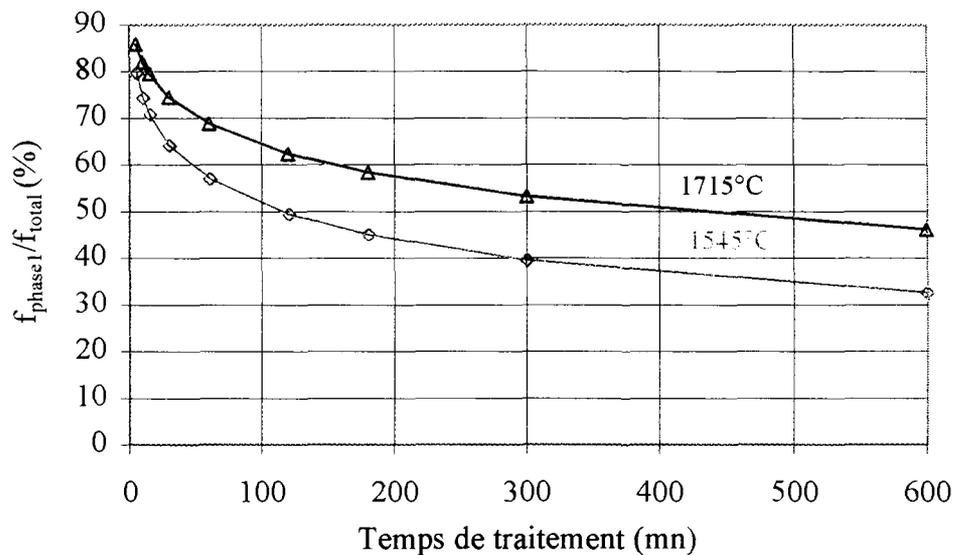


Figure 88 : Contribution du relâchement du Xénon par formation de tunnels au relâchement total, en fonction du temps de traitement, pour deux températures différentes

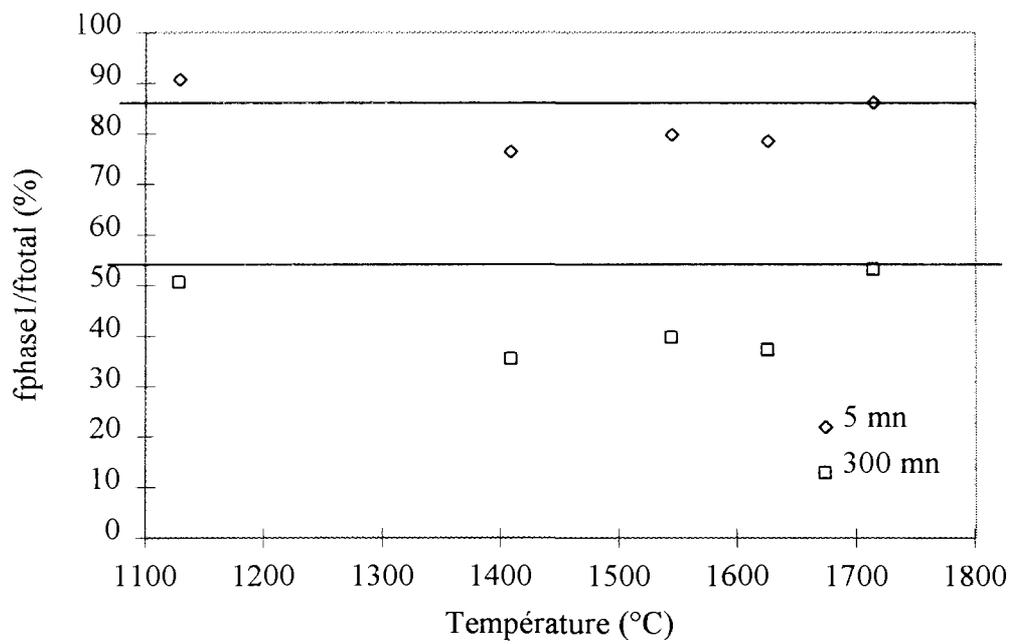


Figure 89 : Contribution du relâchement du Xénon par formation de tunnels au relâchement total, en fonction de la température, pour deux temps de traitement différents

fission vers l'extérieur. Il a été estimé par soustraction du relâchement par diffusion atomique, (équation (V. 4)) au relâchement total. Les mesures à 1715°C montrent, à nouveau, une grande dispersion des points. Si on examine le nuage de points, on peut définir deux courbes enveloppes, liées à l'incertitude de températures de  $\pm 20^\circ\text{C}$ . Les points maximaux sont considérés à une température de 1735°C et les points minimaux à une température de 1695°C. La Figure 86 montre l'évolution du relâchement ainsi obtenu, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures. Les courbes font apparaître **un relâchement massif initial qui se sature en 30 mn**. Cela est en accord avec les **mesures de la porosité ouverte** (Figure 63), qui présente la même évolution.

### II.3. Comparaison expérimentale des deux mécanismes de relâchement en présence

Nous avons, tout d'abord, comparé les cinétiques des deux phénomènes de relâchement des gaz de fission. La Figure 87 montre la superposition des deux mécanismes, en fonction du temps de traitement à 1545°C. On observe deux comportements véritablement différents :

- d'une part, le relâchement par formation de tunnels se sature très rapidement. En 30 mn, il a atteint un palier qui reste quasiment constant par la suite ;
- d'autre part, le relâchement par diffusion atomique évolue progressivement avec le temps de traitement. A 30 mn, la progression du relâchement total est alors contrôlé par ce mécanisme.

La Figure 88 montre la contribution du relâchement par formation de tunnels au relâchement total en fonction du temps de traitement. Elle est au départ d'environ 85% pour atteindre environ 40% à 600 mn.

La Figure 89 montre que cette contribution pour deux temps de traitement différents reste quasiment constante avec la température.

### II.4. Analyse critique

#### II.4.1. Analyse de l'énergie d'activation apparente de la diffusion atomique

Comme on l'a vu dans le paragraphe II.2.b du chapitre 2, Hj. Matzke [23] propose une énergie d'activation du Xénon de 4,7 eV dans une matrice comprenant des pièges. **Cette énergie est donc tout à fait en accord avec l'énergie d'activation de 4,6 eV obtenue dans cette étude.**

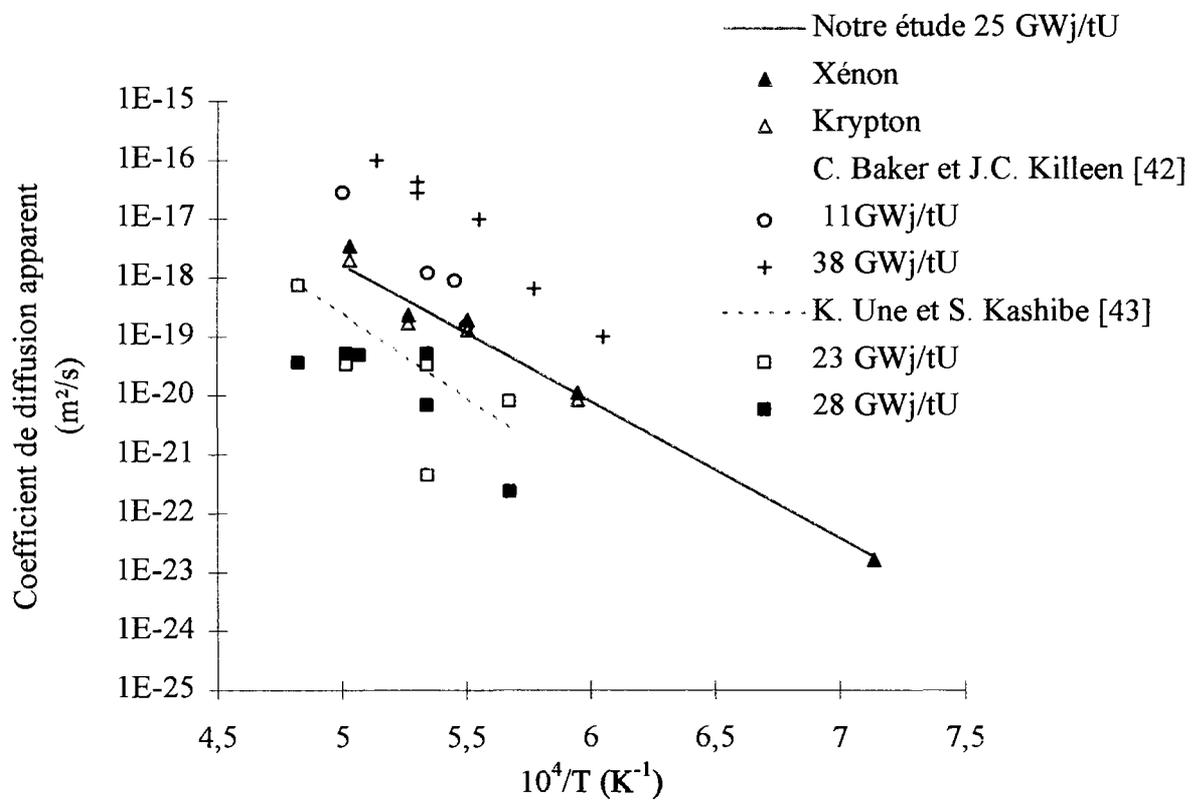


Figure 90 : Coefficients de diffusion apparents des gaz de fission (Xénon et Krypton), en fonction de l'inverse de la température

La différence par rapport à l'énergie d'activation dans une matrice non perturbée provient de :

- la présence de défauts qui piègent les atomes de gaz de fission ;
- l'évolution de la porosité ouverte avec la température qui modifie le rayon  $a$  de la sphère de Booth telle que lorsque l'atome de gaz de fission sort de celle-ci, il est relâché.

#### II.4.2. Comparaison à d'autres études expérimentales

D'autres études expérimentales proposent une analyse équivalente du mécanisme de relâchement par diffusion des gaz de fission. De la même manière, par comparaison au modèle de Booth [24], les auteurs ont déterminé un coefficient de diffusion empirique  $D'$ . Ce coefficient est égal au coefficient de diffusion apparent  $D$ , sur le rayon  $a$  de la sphère de Booth au carré ( $a$  est défini tel que lorsqu'un atome de gaz de fission sort de celle-ci, il est relâché). Ils sont cependant allés plus loin en déterminant le coefficient de diffusion apparent  $D$  à partir de  $a$  considéré constant et égal au rayon du grain. Bien que cette hypothèse ne soit pas en accord avec nos résultats qui montrent au contraire une évolution avec la température de la porosité ouverte, nous avons fait le même calcul pour permettre une comparaison de notre travail à ces études.  $a$  est pris égal à la moitié de la taille du grain soit  $4,7 \mu\text{m}$ .

Les valeurs des différents coefficients de diffusion sont présentées sur la Figure 90. Nos résultats se situent entre les deux autres études. Les points d'une étude à l'autre sont très dispersés. Ces fluctuations montrent que les conditions expérimentales ont beaucoup d'influence sur le relâchement : notamment, les conditions de montée en température, le taux de combustion...

#### II.5. Bilan

Les mécanismes de relâchement, identifiés par d'autres auteurs, permettent donc d'expliquer les mesures de relâchement des gaz de fission obtenues et de valider un modèle de diffusion des gaz, existant dans la littérature.

### III. INTERPRETATION DU GONFLEMENT INTERGRANULAIRE

Dans cette partie, on cherche le(s) phénomène(s) qui contrôle(nt) le gonflement intergranulaire, à hautes températures. On bâtit ensuite un modèle théorique qui aboutit à une équation reliant le gonflement au temps de traitement et à la température. Enfin, on valide cette équation par les résultats expérimentaux.

### III.1. Croissance par coalescence ou (et) par absorption d'atomes

Les micrographies, ainsi que les mesures effectuées, ont montré une diminution du nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains en fonction du temps de traitement et de la température. Or, on peut aussi constater que les bulles interconnectées aux joints de grains qui débouchent sur l'extérieur ne se referment pas. Toutes les bulles créées laissent une empreinte. La disparition des bulles se fait donc par un phénomène de coalescence.

On rappelle qu'avec l'augmentation du temps de traitement, l'existence de toutes petites bulles, pouvant traduire une germination en continu, n'est pas observé.

On peut se demander si ce mécanisme de coalescence est prépondérant dans le gonflement intergranulaire, ou, s'il est en compétition avec la croissance des bulles par absorption d'atomes de l'intérieur du grain.

Posons, tout d'abord, comme hypothèse que la coalescence est le mécanisme prépondérant contrôlant la croissance des bulles intergranulaires. Nous allons déterminer la relation théorique qui existe entre le gonflement intergranulaire  $G$  et le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains  $N_L(P)$  et examiner si les points expérimentaux sont en accord avec ces lois.

Supposons donc que le gonflement ne soit dû qu'à la coalescence. Lors de l'association des bulles intergranulaires entre elles, le nombre d'atomes de gaz de fission piégés sur la surface du joint de grains reste constant. La conservation du nombre d'atomes de gaz de fission s'écrit :

$$nN_s(P) = M = \text{constante} \quad (\text{V. 6})$$

où  $n$  est le nombre d'atomes de gaz de fission par bulle,  $N_s(P)$  le nombre de bulles par unité de surface de joints de grains et  $M$ , le nombre d'atomes de gaz de fission total par unité de surface de joint de grains.

En remplaçant le nombre d'atomes,  $n$ , de gaz de fission par bulle donné par l'équation (II. 10) du chapitre 2 qui admet les mêmes hypothèses, l'expression (V. 6) s'écrit :

$$N_s(P) \rho^2 = \left( \frac{MkT}{F_v \cdot 2\gamma\sigma} \right) \quad (\text{V. 7})$$

Or le nombre de bulles par unité de surface  $N_s(P)$  est liée par l'équation (III. 7) du chapitre 3 au nombre de bulles  $N_L(P)$  par unité de longueur de joint de grains. L'équation (V. 7)

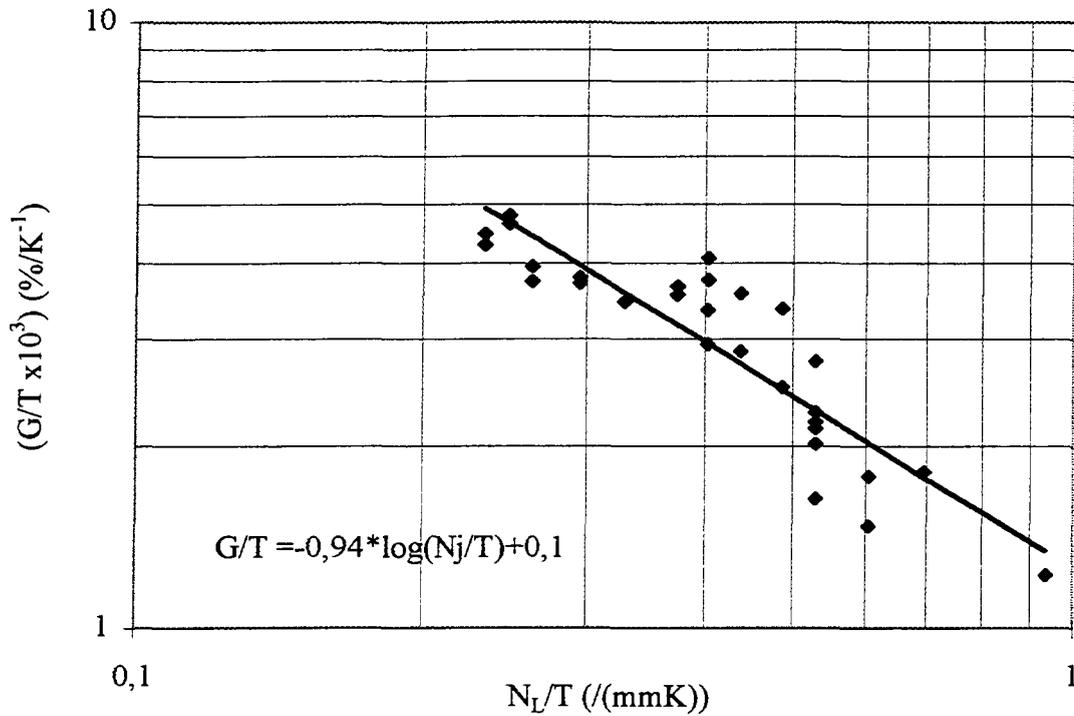


Figure 91 : Gonflement intergranulaire des échantillons traités, rapporté à la température, en fonction du nombre de bulles pour 1 mm de longueur de joint de grains rapporté à la température du combustible étudié

*Le temps est compris entre 5 mn et 10 h et la température entre 1410°C et 1715°C.  
Les points expérimentaux suivent la loi théorique (en trait plein) basée sur l'hypothèse de la coalescence des bulles.*

devient :

$$\rho = \left( \frac{MkT \sin \psi}{F_v \gamma_s} \right) \frac{1}{N_L(P)} \quad (V. 8)$$

Le gonflement intergranulaire est, en outre, égal au produit du volume moyen d'une bulle par la concentration volumique en bulles  $N_v(P)$  :

$$G = V N_v(P)$$

D'après l'équation (III. 8) du chapitre 3 et l'équation du volume d'une bulle lenticulaire (II. 4), du chapitre 2, cela devient :

$$G = F_v \rho^2 \frac{2 N_L(P)}{\ell \sin \psi} \quad (V. 9)$$

où  $\psi$  est l'angle de raccordement des deux moitiés de la cavité de la bulle lenticulaire et  $\bar{\ell}$  l'intercept moyen du grain.

En insérant l'expression (V. 8) dans (V. 9), le gonflement intergranulaire et le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains sont liés par :

$$G = \left( \frac{MkT}{\gamma_s} \right)^2 \frac{2 \sin \psi}{\ell F_v N_L(P)} \quad (V. 10)$$

ce qui s'écrit encore :

$$\frac{G}{T} = \frac{A}{N_L(P)/T} \quad (V. 11)$$

ce qui est équivalent à :

$$\log(G/T) = \log A - \log(N_L/T) \quad (V. 12)$$

avec

$$A = \left( \frac{Mk}{\gamma_s} \right)^2 \frac{2}{\ell F_v} \sin \psi = \text{constante}$$

La Figure 91 présente la relation expérimentale entre le gonflement intergranulaire rapporté à la température et le nombre de bulles par unité de longueur de joint de grains rapporté à la température. Les points expérimentaux forment une droite dont l'équation obtenue par une régression linéaire de ces points s'écrit :

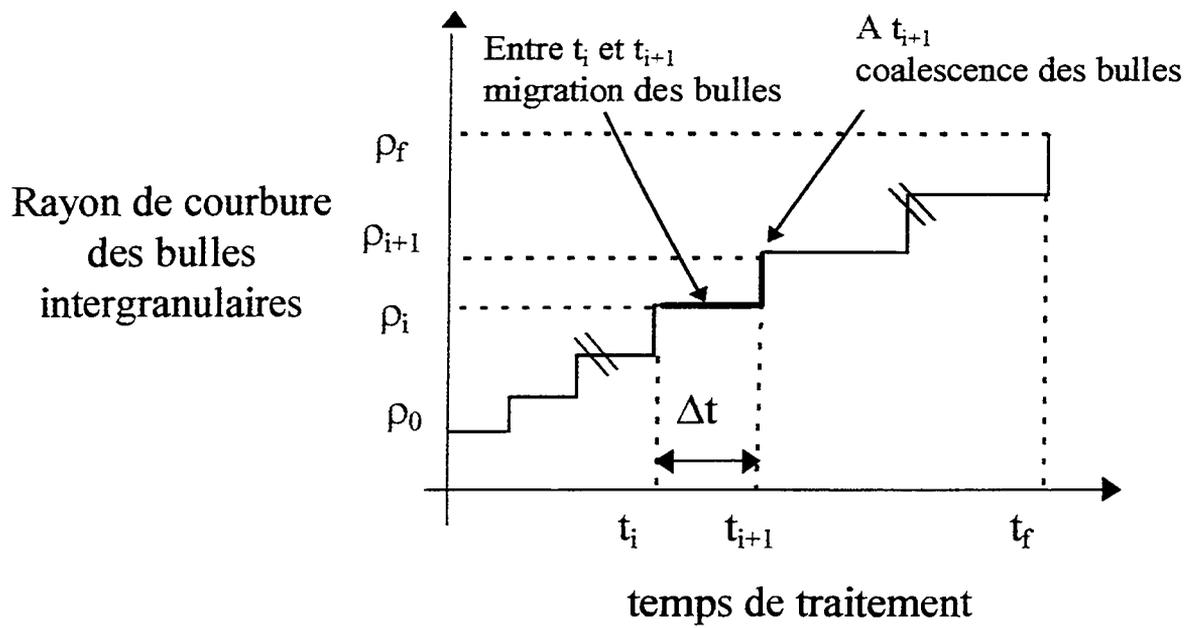


Figure 92 : Schéma d'évolution du rayon de courbure des bulles intergranulaires en fonction du temps, lors d'un traitement thermique

$$\log \frac{G(\%)}{T} = -0,9 \log \frac{N_j(/mm)}{T} + 0,1$$

La pente de -0,9 est quasiment égale au facteur -1 proposé par la relation théorique (V. 12). Le coefficient A est égal à 1,3 (%mm). La relation théorique et les points expérimentaux sont donc en accord. **L'hypothèse de la prépondérance de la coalescence des bulles dans le gonflement intergranulaire semble donc valable.**

### III.2. Modèle de gonflement par coalescence des bulles

Il nous est apparu nécessaire de construire un modèle théorique, fondé sur le phénomène de coalescence.

Les hypothèses de départ sont celles proposées par G.W Greenwood et M.V. Speight [24].

Les atomes de gaz de fission dans la matrice ont été créés, par une irradiation préalable à relativement basse température, dans un réacteur nucléaire. La concentration surfacique en atomes de gaz de fission stockés sur le joint de grains est M. A l'instant initial du traitement thermique, les atomes de gaz de fission ont précipité instantanément sur les joints de grains pour former  $N_0$  germes par unité de surface de joint de grain, de rayon  $\rho_0$ .

Le gaz est considéré parfait.

On suppose que le gonflement intergranulaire est dû au seul phénomène de coalescence des bulles (on néglige donc la croissance des bulles par absorption d'atomes provenant de l'intérieur du grain). Lors du traitement thermique, les bulles deviennent mobiles. On considère qu'elles migrent au hasard donc qu'elles ne s'attirent pas entre elles. Lorsque deux bulles se rencontrent, elles fusionnent et pour rétablir son équilibre, la nouvelle bulle absorbe immédiatement des lacunes dont le nombre dépend de la taille de la bulle. Au cours du temps, le nombre de bulles diminue donc et la taille des bulles augmente.

Les bulles se situant aux joints de grains, ne sont pas sphériques mais lenticulaires de rayon de courbure  $\rho$ .

Nous allons déterminer l'équation du gonflement intergranulaire en fonction du temps de traitement et de la température. Elle se calcule à partir du rayon de courbure.

Contrairement au modèle de G.W. Greenwood et M.V. Speight, nous n'avons pas déterminé de taux de coalescence des bulles, ni fait d'hypothèses sur le mécanisme qui conduit à la migration au hasard des bulles.

L'évolution du rayon de courbure est examinée en découpant le temps en différents

intervalles  $\Delta t$ , tels que pendant chaque pas de temps  $\Delta t$ , chaque bulle migre et à la fin de l'événement  $\Delta t$ , chaque bulle coalesce avec une autre bulle voisine. Durant le temps  $\Delta t$ , il n'y a donc pas de coalescence des bulles qui ne se produit qu'en fin de ce temps  $\Delta t$ .

Appelons  $t_i$  le début de l'intervalle  $\Delta t$  et  $t_{i+1}$  la fin de cet intervalle. Entre  $t_i$  et  $t_{i+1}$ , le rayon est égal à  $\rho_i$  et passe au temps  $t_{i+1}$  lors de la coalescence de  $\rho_i$  à  $\rho_{i+1}$  (Figure 92).

1. **Les bulles bougent selon un mouvement brownien.** Pendant un temps  $\Delta t = t_{i+1} - t_i$ , une bulle se sera déplacée sur la surface du joint de grains d'une distance  $\bar{x}$ , équivalente au parcours quadratique moyen de la bulle et définie par [50] :

$$\bar{x} = (4 D_b \Delta t)^{1/2} = (4 D_b (t_{i+1} - t_i))^{1/2}$$

où  $D_b$  est le coefficient de diffusion de la bulle.

ce qui s'exprime aussi par :

$$t_{i+1} - t_i = \frac{\bar{x}^2}{4D_b} \quad (\text{V. 13})$$

2. **Pendant le temps  $\Delta t = t_{i+1} - t_i$ , la bulle se déplace sur une distance  $\bar{x}$  sans rencontrer d'autres bulles.** Chaque section  $\pi \bar{x}^2$  de la surface du joint de grains ne contient qu'une seule bulle. Le nombre de bulles par unité de surface de joints de grains  $N_s(P)$  est donc :

$$N_s(P) = \frac{1}{\pi \bar{x}^2}$$

d'où

$$\bar{x}^2 = \frac{1}{\pi N_s(P)} \quad (\text{V. 14})$$

3. **Au temps  $t_{i+1}$ , chaque bulle rencontre sa voisine.** Elles coalescent deux à deux. Le rayon passe de  $\rho_i$  à  $\rho_{i+1}$ . On a vu que, lors de la coalescence des bulles, la somme des surfaces des bulles se conserve et que la surface d'une bulle de rayon de courbure  $\rho$  est égale à  $F_s \rho^2$  (paragraphe II. 2 du chapitre 2). La fusion des deux bulles identiques de surface  $S_1$  donne une bulle de surface  $S_2$  définie par :

$$S_2 = 2S_1$$

ce qui est équivalent à :

$$F_s(\rho_{i+1})^2 = 2 F_s \rho_i^2$$

d'où

$$\rho_{i+1} = \sqrt{2} \rho_i \quad (\text{V. 15})$$

La suite  $\rho$  est donc géométrique de raison  $\sqrt{2}$ . Elle s'écrit aussi :

$$\rho_i = \sqrt{2}^{(i-f)} \rho_f \quad (\text{V. 16})$$

où  $\rho_f$  est le rayon de courbure de la bulle à  $t_f$ .

L'évolution du rayon de courbure  $\Delta\rho$  est alors :

$$\Delta\rho = \rho_{i+1} - \rho_i = (\sqrt{2} - 1) \rho_i \quad (\text{V. 17})$$

4. Lors de la coalescence des bulles, le nombre de bulles par unité de surface de joints de grains et le rayon de courbure  $\rho_i$  sont liées par la relation (V. 7).

5. On considère que plus la bulle est importante, moins elle se déplace rapidement. On propose donc d'introduire dans le coefficient de diffusion le terme  $1/\rho_i^q$  avec  $q > 1$ . L'effet de la température est représenté par la loi d'Arrhénius. **Le coefficient de diffusion des bulles  $D_b$  est donc supposé de la forme :**

$$D_b = D_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \frac{1}{\rho_i^q} \text{ avec } q > 1 \quad (\text{V. 18})$$

Le rapport  $\frac{\rho_{i+1} - \rho_i}{t_{i+1} - t_i}$  s'écrit d'après (V. 13) et (V. 17) :

$$\frac{\rho_{i+1} - \rho_i}{t_{i+1} - t_i} = \frac{4D_b (\sqrt{2} - 1) \rho_i}{\bar{x}^2}$$

Si on remplace  $D_b$  par l'équation (V. 18) et  $\bar{x}$  par (V. 14), on obtient :

$$\frac{\rho_{i+1} - \rho_i}{t_{i+1} - t_i} = \frac{4 D_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \frac{1}{\rho_i^q} (\sqrt{2} - 1) \rho_i}{1/\pi N_s}$$

Or  $N_s(P)$  est donné par l'équation (V.3) d'où :

$$\frac{\rho_{i+1} - \rho_i}{t_{i+1} - t_i} = \frac{4\pi(\sqrt{2} - 1)D_0 M}{F_v} \frac{k}{2\gamma s} T \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \frac{1}{\rho_i^{q+1}}$$

Cette expression est de la forme :

$$\frac{\rho_{i+1} - \rho_i}{t_{i+1} - t_i} = K(T) \frac{1}{\rho_i^{q+1}} \quad (\text{V. 19}) \quad \text{avec} \quad K(T) = \frac{4p(\sqrt{2}-1)D_0 M}{F_v} \frac{k}{2\gamma_s} T \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \quad (\text{V. 20})$$

En remplaçant  $\rho_{i+1}$  par (V. 15) et  $\rho_i$  par (V. 16), l'équation (V. 19) se transforme en :

$$(\sqrt{2}-1) \cdot \sqrt{2}^{(i-f)(q+2)} \rho_i^{(q+2)} = K(T) (t_{i+1} - t_i) \quad (\text{V. 21})$$

Nous allons maintenant sommer l'ensemble des intervalles de temps  $\Delta t$ , qui se sont réalisés de façon à déterminer l'évolution du rayon de courbure  $\rho_f$  à  $t_f$ . A chaque instant  $t_f$ , il s'est produit  $f$  pas de temps  $\Delta t$  pendant lequel le rayon a varié de  $\rho_0$  à  $\rho_f$ . L'origine des temps est à  $t_0$ .

$$\sum_{i=0}^{f-1} (t_{i+1} - t_i) = t_f \quad \text{avec } f \geq 1$$

Si on somme de 0 à  $f-1$ , l'équation (V. 21), on a :

$$(\sqrt{2}-1) \rho_i^{(q+2)} \sqrt{2}^{(-f)(q+2)} \sum_{i=0}^{f-1} \sqrt{2}^{(i)(q+2)} = K(T) t_f \quad (\text{V. 22})$$

Or

$$\sum_{i=0}^{f-1} \sqrt{2}^{(i)(q+2)} = \frac{1 - \sqrt{2}^{f(q+2)}}{1 - \sqrt{2}^{q+2}} \quad (\text{V. 23})$$

En insérant (V. 23) dans (V. 22), on obtient :

$$(\sqrt{2}-1) \rho_i^{(q+2)} \sqrt{2}^{(-f)(q+2)} \frac{1 - \sqrt{2}^{f(q+2)}}{1 - \sqrt{2}^{q+2}} = K(T) t_f$$

Pour  $f \geq 2, 3$ , le terme  $\frac{1}{\sqrt{2}^{f(q+2)}}$  est négligeable devant 1.

$$\rho_i^{(q+2)} = \frac{(\sqrt{2}^{q+2} - 1)}{(\sqrt{2} - 1)} K(T) t_f$$

En remplaçant  $K(T)$  par l'expression (V.20) :

$$\rho_{t^{(q+2)}} = \frac{4\pi(\sqrt{2}^{q+2} - 1)D_0 M k}{F_v 2\gamma_s} T \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) t_f$$

ce qui est égal à :

$$\rho_{t^{(q+2)}} = \left( \frac{4\pi(\sqrt{2}^{q+2} - 1)D_0 M k}{F_v 2\gamma_s} T \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) t_f \right)^{1/q+2}$$

Le rayon  $\rho_f$  au temps  $t_f$  correspond au rayon  $\rho$  au temps  $t$ .

$$\rho = \left( \frac{4\pi(\sqrt{2}^{q+2} - 1)D_0 M k}{F_v 2\gamma_s} T \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) t \right)^{1/q+2} \quad (\text{V. 24})$$

En associant l'équation (V. 8) et (V. 9), le rayon de courbure et le gonflement sont liés par :

$$\frac{G}{T} = \frac{2 M k}{\bar{\ell} \gamma_s} \rho$$

En insérant l'équation (V. 24), le gonflement rapporté à la température est donné par :

$$\frac{G}{T} = \frac{M k 2}{2\gamma_s \bar{\ell}} \left( \frac{4\pi(\sqrt{2}^{q+2} - 1)D_0 M k}{F_v 2\gamma_s} T \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) t \right)^{1/q+2}$$

Il est de la forme :

$$\boxed{\frac{G}{T} = D \left( t \cdot T \cdot \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \right)^{1/q+2}} \quad (\text{V. 25})$$

avec

$$D = \frac{M k 2}{\gamma_s \bar{\ell}} \left( \frac{4\pi(\sqrt{2}^{q+2} - 1)D_0 M k}{F_v 2\gamma_s} \right)^{1/q+2} \quad (\text{V. 26})$$

G: gonflement

T : température

t : temps de traitement

Q : énergie d'activation apparente

R : constante des gaz parfaits

M : nombre d'atomes de gaz de fission

k : constante de Boltzmann

par unité de surface de joint de grains

$\gamma_s$  : tension superficielle

$\bar{\ell}$  : intercept moyen du grain

$D_0$  : facteur de fréquence de la loi d'Arrhénius

$F_v$  : facteur proportionnel au volume de la bulle

On remarque que cette équation n'est valable que pour  $f \geq 1$  c'est à dire lorsqu'un pas de temps  $\Delta t$  s'est écoulé.

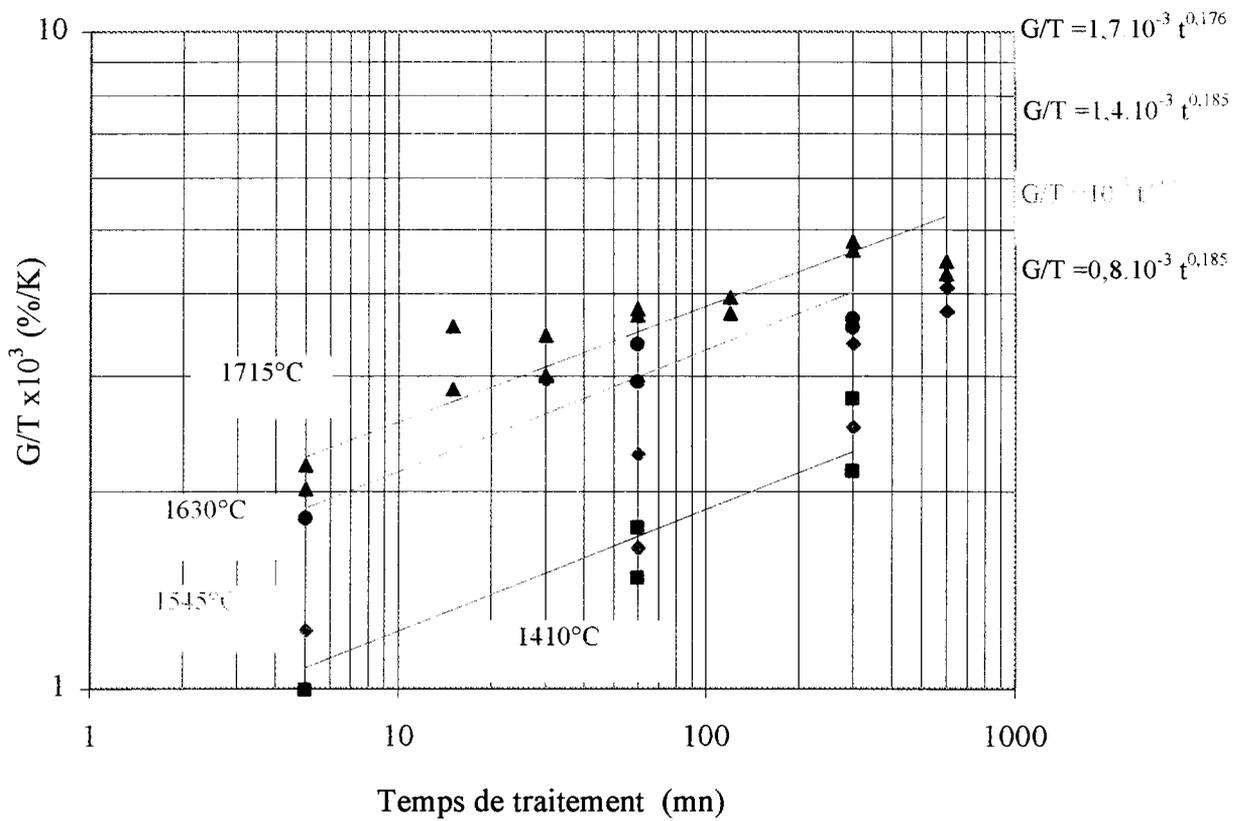


Figure 93 : Gonflement intergranulaire des échantillons traités, rapporté à la température, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures (coordonnées logarithmiques)

*Le temps est compris entre 5 mn et 10 h et la température entre 1410°C et 1715°C.*

L'équation (II. 13) du chapitre 2, obtenue par G.W. Greenwood et M.V. Speight et celle ici sont voisines : on retrouve le même paramètre  $H = t.T.\exp(-Q/RT)$ .

**Cette partie aboutit donc à un modèle théorique, basé sur la coalescence des bulles et paramétré par le temps de traitement et la température.**

### III.3. Confrontation du modèle théorique aux points expérimentaux

Dans cette partie, nous allons confronter les points expérimentaux du gonflement intergranulaire au modèle théorique développé ci-dessus et déterminer le coefficient  $q$  (qui déterminera la vitesse des bulles) ainsi que l'énergie d'activation apparente  $Q$  du mécanisme de gonflement intergranulaire. Cela permettra l'obtention d'une loi semi-empirique de gonflement intergranulaire.

#### III.3.1. Effet du temps de traitement

D'après le modèle développé précédemment, l'évolution du gonflement intergranulaire rapporté à la température est donnée par la formule (V. 25).

On pose :

$$C_T = D T^{1/q+2} \cdot \exp\left(\frac{-Q}{RT(q+2)}\right)$$

Le gonflement sur la température s'écrit alors:

$$\frac{G}{T} = C_T \cdot t^{1/q+2}$$

La Figure 93 présente le gonflement intergranulaire rapporté à la température, en fonction du temps de traitement (coordonnées logarithmiques). Si on effectue une régression linéaire, pour chaque température, sur l'ensemble des points expérimentaux, on obtient des droites parallèles. Ceci pourrait valider la forme proposée en fonction du temps, pour tous les traitements.

On remarque cependant qu'un autre choix aurait pu être fait : faire passer à 1410°C et 1545°C, les mêmes droites que sur la Figure 93, mais à 1630°C et 1715°C, en exceptant les traitements de 5 mn, deux droites parallèles de pente plus faible que les deux précédentes (cette atténuation de la pente traduisant l'intervention d'un nouveau mécanisme à très haute température). Toutefois, compte tenu de la dispersion des résultats, on retient le choix fait sur la Figure 93. Pour conclure, il faudrait de nouveaux points expérimentaux. Un prolongement du travail pourrait être prévu dans ce sens.

Température (°C)	$C_T$ (%/K.s <sup>1,5,4</sup> )
1410	$0,381.10^{-3}$
1545	$0,52.10^{-3}$
1630	$0,625.10^{-3}$
1715	$0,743.10^{-3}$

Tableau 30 : Coefficient  $C_T$  en fonction de la température

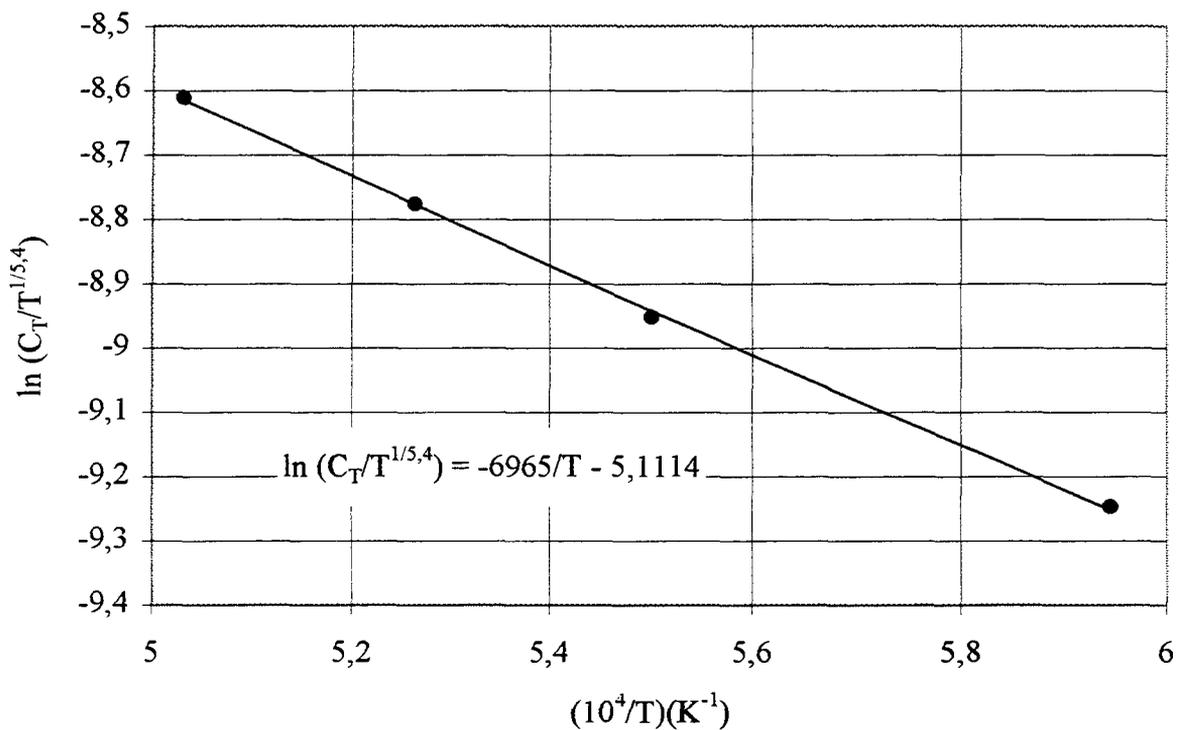


Figure 94 : Evolution du logarithme népérien du coefficient  $C_T/T^{1/5,4}$  en fonction de l'inverse de la température

$$C_T \text{ est défini tel que } G/T = C_T \cdot t^{1/5,4}$$

( $G$  est le gonflement,  $t$  le temps de traitement,  $T$  la température)

Sur la Figure 93, établie comme il vient d'être dit ci-dessus, on peut donc déterminer le coefficient  $1/q+2$  qui est égal à la moyenne des pentes des différentes courbes. On trouve :

$$1/q+2 = 0,185 \text{ d'où } q = 3,4$$

On peut faire une analogie avec les mécanismes théoriques intragranulaires de migration au hasard qui donnent des exposants de 3 et 4 [8].

En remplaçant  $q+2$  par sa valeur, le gonflement s'écrit :

$$\frac{G}{T} = C_T \cdot t^{1/5,4}$$

On a déterminé le coefficient  $C_T$  pour les différentes températures en traçant le gonflement sur la température en fonction du temps à la puissance (1/5,4) puis, en effectuant une régression linéaire des points expérimentaux qui passe par l'origine. Les coefficients  $C_T$ , ainsi obtenus, sont présentés dans le Tableau 30.

### III.3.2. Effet de la température

On va étudier l'effet de la température qui est comprise dans le coefficient  $C_T$ .  $C_T$  s'écrit :

$$C_T = D T^{1/q+2} \cdot \exp\left(\frac{-Q}{RT(q+2)}\right)$$

d'où,

$$\frac{C_T}{T^{1/q+2}} = D \cdot \exp\left(\frac{-Q}{RT(q+2)}\right)$$

La Figure 94 présente  $C_T/T^{1/5,4}$  en fonction de  $1/T$ . Les points expérimentaux s'alignent et donc valident la forme proposée. **Sur toute la gamme de température, la coalescence des bulles est donc le seul mécanisme prépondérant dans le gonflement.** La pente de la droite est égale à  $[-Q.R(5,4)]$ , ce qui permet de déterminer  $Q$  :

$$Q = 310 \text{ kJ/mole}$$

Cette énergie d'activation de 310 kJ qui correspond à une migration de bulles intergranulaires est comme attendu plus basse que l'énergie d'activation de 540kJ (5,6 eV),

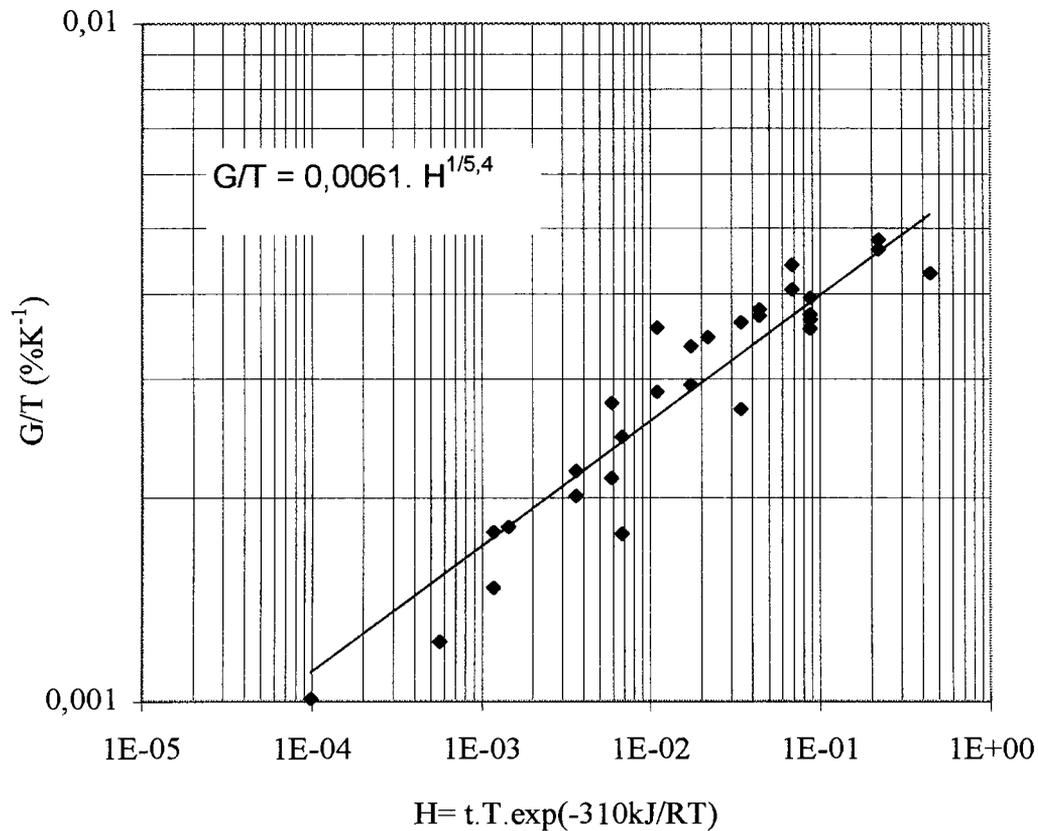


Figure 95 : Gonflement intergranulaire des échantillons traités, rapporté à la température en fonction du temps de traitement corrigé de l'influence de la température (coordonnées logarithmiques)

*Le temps est compris entre 5 mn et 10 h et la température entre 1410°C et 1715°C.  
 Les points expérimentaux sont regroupés autour de la loi semi-empirique de gonflement intergranulaire (en trait plein).*

citée pour la migration des bulles dans le grain (II.2.2.b du chapitre 2). Cette énergie est, en outre, plus élevée que l'énergie d'activation de 239 kJ d'autodiffusion de l'uranium aux joints de grains, proposée par G.L. Reynolds et B. Burton [51].

L'équation de gonflement s'écrit alors :

$$\frac{G}{T} = D t^{1/5,4} \cdot T^{1/5,4} \cdot \exp\left(\frac{-310 \cdot 10^3}{rT}\right)^{1/5,4}$$

Il peut s'exprimer en fonction d'un paramètre  $H = t \cdot T \exp\left(\frac{-310 \cdot 10^3}{rT}\right)$

$$\frac{G}{T} = D H^{1/5,4}$$

G/T en fonction de H est représenté sur la Figure 95 en coordonnées logarithmiques. Les points expérimentaux sont, en effet, regroupés autour de cette droite. On peut ainsi déterminer le facteur D.

$$D = 0,0061 (\%/K^{6,4/5,4} s^{1/5,4})$$

**Finalement, l'équation du gonflement s'écrit :**

$$\frac{G}{T} = 0,0061 t^{1/5,4} \cdot T^{1/5,4} \cdot \exp\left(\frac{-310 \cdot 10^3}{RT}\right)^{1/5,4}$$

Ce développement permet donc de proposer une loi semi-empirique de gonflement intergranulaire. Le gonflement G s'exprime en %, la température en K, le temps de traitement en s. La constante des gaz parfaits R est égale à 8,314 J/molK.

**L'équation peut être utilisée pour des temps de traitement compris entre 5 minutes et 10 heures et pour des températures allant de 1410°C à 1715°C. Elle ne s'applique qu'à un combustible deux cycles.**

#### **IV. SYNTHÈSE DES MÉCANISMES DE GONFLEMENT ET DE RELACHEMENT**

##### *Temps de traitements inférieurs à 5 minutes*

Lorsque l'on chauffe, les gaz de fission précipitent et forment des microbulles. En 5 minutes, pour des températures comprises entre 1130°C et 1715°C, les bulles qui ont pris naissance sur les joints de grains, vont atteindre une taille observable en microscopie

électronique à balayage. Par contre, dans les grains, les bulles n'ont pas suivi la même évolution et ne sont pas visibles. Aucun traitement inférieur à 5 minutes n'a été effectué. Donc les mécanismes qui conduisent à l'apparition rapide de bulles intergranulaires n'ont pas fait l'objet de cette thèse.

#### *Temps de traitements compris entre 5 minutes et 30 minutes*

La croissance des bulles intergranulaires est contrôlée par le phénomène de coalescence. Cela conduit à une augmentation de la taille des bulles et une diminution du nombre de bulles avec le temps. Le gonflement est dû à l'association des bulles entre elles.

Cette coalescence des bulles se traduit aussi par une interconnexion rapide des bulles aux arêtes communes à plusieurs grains et parfois sur les faces de certains grains. Cela aboutit à la formation de tunnels qui accèdent vers l'extérieur. Ces tunnels constituent la porosité ouverte. Cette dernière est d'autant plus importante que la température est élevée. Les bulles ayant créé les tunnels relâchent alors massivement leur gaz de fission vers l'extérieur, provoquant une bouffée rapide de gaz de fission. Dans cette première phase, gonflement et relâchement sont donc étroitement liés.

#### *Temps de traitements compris entre 30 minutes et 10 heures*

La formation de tunnels vers l'extérieur n'a plus lieu. Mais, des gaz de fission provenant de la matrice par diffusion accèdent aux tunnels et sont relâchés. Ce mécanisme, masqué tout d'abord par la formation de tunnels, devient prépondérant dans cette deuxième phase. En outre, la coalescence des bulles sur les faces des grains sans accès vers l'extérieur se poursuit. Dans cette deuxième phase, gonflement et relâchement sont deux mécanismes dissociés.

On a vu que le phénomène de coalescence des bulles est le mécanisme prépondérant dans le gonflement, le phénomène de croissance par absorption d'atomes de gaz de fission provenant de la matrice n'étant pas observé. On peut se demander pourquoi. Deux hypothèses peuvent être avancées : les atomes arrivant par diffusion aux joints de grains sont en quantité trop faible pour faire grossir significativement les bulles ; les atomes qui arrivent par diffusion aux joints de grains sont évacués vers l'extérieur et ne participent pas au gonflement. Il est intéressant à ce stade de comparer le nombre d'atomes mis en jeu dans le gonflement et le relâchement par diffusion. Pour un traitement thermique intermédiaire, par exemple, 1545°C et 300 mn, le nombre d'atomes de gaz de fission relâchés, pour 1 cm<sup>3</sup>,

est  $7.10^{18}$  atomes/cm<sup>3</sup> (Annexe 9). Dans les mêmes conditions, on calcule un nombre d'atomes de gaz de fission dans les bulles intergranulaires de  $8.10^{18}$  atomes/cm<sup>3</sup> (Annexe 9). Les quantités de gaz relâchés et de gaz contenus dans les bulles sont équivalentes. On retiendra donc la deuxième hypothèse donnée ci-dessus : les atomes de gaz qui arrivent par diffusion dans le joint de grains sont évacués vers l'extérieur et ne participent pas au gonflement.

Les bulles intragranulaires ne sont observées qu'à une température de 1715°C. Pour des températures inférieures, leur contribution au gonflement total est négligeable.

## V. REPRESENTATIVITE DES TRAITEMENTS THERMIQUES APPLIQUES

L'étude du gonflement et du relâchement des gaz de fission a consisté à porter en température, en four de laboratoire, des échantillons de combustible UO<sub>2</sub> irradié. Ce processus expérimental a été privilégié à des essais en pile, pourtant parfaitement représentatifs. En effet, les essais en pile, outre leur complexité et leur coût, donnent des résultats difficilement interprétables compte tenu des nombreux paramètres qu'ils mettent en jeu et qu'il est quasiment impossible de déconvoluer.

Les essais en four mis en oeuvre posent donc un problème de représentativité. Nous allons en discuter en comparant les conditions, dans lesquelles est placé le combustible lors de traitements thermiques et lors d'un transitoire de puissance. Cette discussion a pour but de mieux cerner les limites des modèles proposés et de donner quelques pistes pour d'éventuels prolongements de l'étude effectuée.

### *La température*

Lors du transitoire de puissance décrit sur la Figure 6 du chapitre 1, la température du combustible est comprise entre 600°C en périphérie et 1850°C en son centre. La gamme des traitements effectués va de 1130°C à 1715°C. Or, on a vu que les seules zones de la pastille, concernées par les phénomènes étudiés, sont celles portées au dessus de 1130°C. Donc, l'étude couvrira les zones de la pastille comprises entre 600°C et 1715°C. Pour les températures supérieures, qui correspondent au centre de la pastille, aucun traitement n'a été pratiqué en four (on rappelle que la capacité du four était limitée à 1715°C). L'étude pourrait se poursuivre en explorant l'effet de ces températures très élevées ; d'autant qu'il est possible que, pour ces températures, d'autres mécanismes que ceux observés à 1715°C soient mis en jeu.

### *Le temps de chauffage*

Le transitoire de puissance porte le centre du combustible à 1850°C, en 2 mn environ. Le temps de chauffage est donc très voisin de ce qui a été pratiqué lors des essais en four (2mn30s environ de temps de chauffage).

### *Le temps de maintien*

Le temps de maintien va de quelques minutes à 12 heures, pour le transitoire de puissance du chapitre 1, donc dans la fourchette de ce qui a été pratiqué en four (traitements de 5 mn à 10 h). Si l'on considérait des transitoires de durées de maintien inférieures à 5 mn, les modèles proposés ne pourraient être appliqués sans une vérification préalable, car pour des temps courts, il n'est pas impossible que les mécanismes de gonflement et de relâchement ne soient pas ceux pris en compte. Pour le gonflement par exemple, la germination et la croissance des bulles pourraient être alors des phénomènes prépondérants (nous avons considéré que le phénomène de coalescence était prioritaire au delà de 5 minutes).

### *L'effet de l'irradiation*

Les traitements thermiques effectués en four de laboratoire ne prennent pas en compte l'effet du flux de neutrons sur le gonflement et le relâchement des gaz de fission. Or cela peut avoir une influence sur certains mécanismes mis en jeu. Notamment les lacunes créées par l'irradiation peuvent accélérer la diffusion des atomes de gaz de fission. En outre, l'absence d'irradiation élimine le phénomène de remise en solution des bulles qui peut survenir lorsqu'elles sont percutées par un produit de fission.

Il serait intéressant d'effectuer une étude similaire en réacteur pour déterminer l'effet de l'irradiation sur le gonflement et le relâchement des gaz de fission.

## **CONCLUSION**

## CONCLUSION

Lors d'un transitoire de puissance en réacteur, la température au centre de la pastille de combustible s'élève, ce qui entraîne, entre autres, un gonflement de la pastille et un relâchement des produits de fission volatils et des gaz de fission. Ces deux phénomènes contribuent au risque de rupture de la gaine. Ils sont étudiés dans cette thèse, qui aboutit à une formulation, fondée sur leur compréhension, des effets de la température et du temps.

Différents échantillons d' $\text{UO}_2$ , issus d'un combustible R.E.P., ayant fonctionné en conditions normales pendant deux cycles, soit un taux de combustion de 25 GWj/tU, ont été traités en four de laboratoire à des températures allant de 1100°C à 1700°C pour des temps de maintien de 5 minutes à 10 heures.

### *Techniques de mesure du gonflement et du relâchement*

La mesure du gonflement a tout d'abord été effectuée par la technique de pesée hydrostatique. Cette technique, dans sa variante classique, permet d'accéder seulement à la porosité fermée, c'est à dire ne communiquant pas avec l'extérieur des échantillons. Après modification du processus expérimental, dans une variante améliorée par un dépôt de vernis à la surface des échantillons, il a été possible de mesurer le gonflement dû à la porosité dans sa totalité. L'analyse d'images au M.E.B. a enfin été appliquée à la mesure du gonflement dû à la porosité intergranulaire (ouverte et fermée), la seule de taille suffisante pour être vue lors des observations microscopiques.

La détermination par analyse spectrale de la quantité de gaz recueillie lors des traitements thermiques, associée à la mesure volumétrique de l'ensemble des gaz prélevés, a permis de mesurer le relâchement des gaz de fission. Il s'exprime par le rapport du volume de gaz relâchés au volume des gaz de fission présents dans les échantillons avant les traitements thermiques.

### *Evolution du gonflement et du relâchement avec la température et le temps de traitement*

Les techniques précédentes ont été utilisées, afin de suivre l'évolution du gonflement avec le temps de traitement et pour chaque température. On constate, pour toutes les températures, une augmentation rapide pendant les 60 premières minutes de traitement, suivie pour les temps plus longs d'une faible croissance. L'effet de la température est net et le gonflement est d'autant plus fort que la température est plus élevée.

Cette évolution a également été observée, lors de l'analyse qualitative et quantitative de la microstructure des échantillons, au M.E.B., en fonction du temps et de la température. On observe une augmentation rapide, dans les 60 premières minutes, de la taille moyenne des bulles ainsi qu'une diminution du nombre de bulles par unité de longueur de joint de grain, puis une évolution plus lente.

Le relâchement évolue de la même façon que le gonflement : augmentation rapide dans les 60 premières minutes de traitement puis croissance lente et effet accélérateur très marqué de la température.

### *Observations, mécanismes de relâchement, modèle numérique*

Les examens micrographiques montrent sur les arêtes des grains une interconnexion des bulles intergranulaires avec formation de tunnels. Certains de ces tunnels sont ouverts vers l'extérieur, permettant le cheminement facile hors du combustible des gaz formés.

Le transport des atomes de gaz de fission vers les joints de grains s'effectue, soit par diffusion des atomes de la matrice vers le joint de grains, soit par migration des bulles intragranulaires. La confrontation des résultats expérimentaux avec un modèle numérique de la littérature, fondé sur la diffusion des atomes de gaz de fission (modèle de Booth), est tout à fait satisfaisante, suggérant ainsi que la diffusion des atomes de gaz est le mécanisme prépondérant.

Le relâchement dans les premières minutes de traitement thermique est contrôlé par la formation des tunnels aux joints de grains qui s'ouvrent dès le début des traitements ; pour les temps plus longs, lorsque les tunnels sont formés, la diffusion des atomes de gaz de la matrice vers les joints de grains contrôle le processus.

### *Observations, mécanismes du gonflement, modèle numérique*

Les examens micrographiques sur les échantillons après les traitements thermiques montrent que les bulles sont intergranulaires, de forme lenticulaire. Lorsque le temps et la

température augmente, la taille des bulles augmente et leur nombre, par longueur unitaire de joint décroît. A ce stade, le phénomène de croissance des bulles par absorption d'atomes de gaz de fission venant de la matrice et le phénomène de coalescence des bulles ont été considérés pour expliquer ces observations. Mais un calcul montre que le gonflement mesuré peut s'expliquer par la seule coalescence des bulles, sans qu'il soit nécessaire de faire appel à leur croissance par absorption d'atomes de gaz de fission.

En se fondant sur le phénomène de coalescence mis en évidence par les examens micrographiques, un modèle numérique a été développé. Ce modèle aboutit à une équation qui donne le gonflement intergranulaire en fonction de la température et du temps. Ce modèle a été confronté aux mesures expérimentales du gonflement. Celles-ci ont permis de fixer les constantes de l'équation suivante :

$$\frac{G}{T} = 0,0061 t^{1/5,4} \cdot T^{1/5,4} \cdot \exp\left(\frac{-310 \cdot 10^3}{RT}\right)^{1/5,4}$$

avec

G : gonflement (%),

T : température (K),

t : temps de traitement (s),

R : constante des gaz parfaits (R=8,314 J/mol K).

Cette équation représente correctement le phénomène de gonflement intergranulaire d'un combustible ayant fonctionné deux cycles en réacteur. Elle est valable pour des temps de traitement compris entre 5 minutes et 10 heures et pour des températures allant de 1100°C à 1700°C.

#### *Description qualitative du comportement des gaz de fission lors d'un traitement thermique*

A l'instant initial, les gaz de fission, produits lors du passage en réacteur, sont présents à l'état atomique ou sous forme de microbulles dans la matrice. Lorsque l'on chauffe, les gaz de fission engendrent un gonflement du combustible et un relâchement des gaz de fission vers l'extérieur.

Dans un premier temps, gonflement et relâchement sont liés. Le gonflement est dû à la coalescence des bulles intergranulaires. Cette coalescence se traduit en outre par la

formation de tunnels sur les arêtes des grains. Lorsque ces tunnels accèdent à l'extérieur, ils relâchent massivement leur gaz de fission.

Dans un deuxième temps, gonflement et relâchement sont dissociés. Le gonflement intergranulaire est toujours dû à la coalescence des bulles intergranulaires. Par contre, la formation des tunnels ne se poursuivant pas, le relâchement des gaz de fission est contrôlé par la diffusion des gaz de l'intérieur de la matrice vers les tunnels déjà formés. Ce mécanisme, masqué lors de la première phase, contrôle, après 30 minutes, le relâchement. L'existence de ce relâchement explique en outre que les bulles intergranulaires ne grossissent pas par absorption d'atomes qui diffusent.

On a observé que le gonflement intragranulaire n'est significatif qu'à une température de 1700°C. A cette température, il reste cependant inférieur au gonflement intergranulaire. Pour des températures inférieures, il est négligeable.

## **Perspectives**

L'étude entreprise porte essentiellement sur le gonflement intergranulaire qui reste majoritaire pour toutes les températures. Il serait toutefois intéressant d'effectuer une étude similaire du gonflement intragranulaire au microscope électronique à transmission.

Comme on l'a vu dans l'étude de la représentativité des traitements thermiques au chapitre 5, l'effet des temps de traitement très courts, inférieurs à 5 minutes et l'influence de l'irradiation n'ont pas été abordés dans le cadre de la thèse. Ces voies mériteraient d'être explorées.

D'autres paramètres pourraient être examinés :

- l'existence du gradient thermique : en réacteur, un transitoire de puissance se traduit par un fort gradient thermique entre le centre et la périphérie de la pastille (environ 600°C pour le transitoire décrit dans le chapitre 1). En four de laboratoire, la température des échantillons est, bien entendu, homogène. Le gradient thermique peut être responsable de plusieurs phénomènes : les bulles peuvent migrer sous l'effet du gradient thermique ; la contrainte thermique résultant du gradient thermique peut accélérer la diffusion des atomes et être à l'origine d'une fracturation du combustible qui favorisera le relâchement des gaz de fission.

- la présence de la gaine : cet effet par l'intermédiaire de l'introduction d'une contrainte dans la pastille peut changer les mécanismes de diffusion, modifiant ainsi le gonflement et le relâchement. En outre, cet effet peut retarder le relâchement en limitant l'ouverture des cheminements par lesquels les gaz s'évacuent.
- l'effet du taux de combustion, puisque notre étude s'est limitée à des échantillons ayant fonctionné en réacteur pendant deux cycles.

## **REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES**

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] H. BAILLY, D. MENESSIER, C. PRUNIER, « Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides », Eyrolles, Paris, (à paraître)
- [2] D. BARON. et P. BOUFFIOUX, « Le crayon combustible des réacteurs à eau pressurisée de grande puissance (Tranches 900 et 1300 MW) », Rapport E.D.F, 1989
- [3] G. DREVON, « Les réacteurs à eau ordinaire », Série Synthèses, Eyrolles, Paris, 1983
- [4] M. GAUTHRON, « Introduction au génie nucléaire », Tome 1, Collection Enseignement, INSTN (CEA-Saclay), 1986
- [5] C. BAKER, « The intragranular fission gas bubble distribution in irradiated uranium dioxide », Europ. Appl. Res. Reports 1979, 1, 35
- [6] J.A. TURNBULL, « The distribution of intragranular fission gas bubbles in  $UO_2$  during irradiation », J. Nucl. Mater., 1971, 38, 203
- [7] Y. QUERE, « Physique des matériaux », Ellipses, Paris, 1988
- [8] D. OLANDER, « Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements », ERDA Technical Information Center, Oak Ridge, Tennessee(USA), 1976
- [9] D. FRANCOIS, A. PINEAU, A. ZAOUÏ « Comportement mécanique des matériaux, viscoplasticité, endommagement, mécanique de la rupture, mécanique de contact », Hermès, Paris, 1993
- [10] K. UNE, « Simulated bubble swelling in  $UO_2$  pellets », J. Nucl. Mater., 1988, 158, 188
- [11] H.J. MATZKE, T. INOUE, R. WARREN, « The surface energy of  $UO_2$  as determined by hertzian indentation », J. Nucl. Mater., 1980, 91, 205
- [12] P. NIKOLOPOPOULOS, S. NAZARE, F. THÜMMLER, « Surface, grain boundary and interfacial energies in  $UO_2$  and  $UO_2$ -Ni », J. Nucl. Mater., 1977, 71, 89
- [13] S. KASHIBE et K. UNE, « Effects of temperature cycling and heating rate on fission gas release of BWR fuels », J. of Nucl. Sci. Techn., 1991, 28(12), 1090

- [14] V.F. CHKUASELI et Hj. MATZKE, « Fission gas bubble behaviour in uranium dioxide », J. Nucl. Mater., 1993, 201, 92
- [15] J.R. MATTHEWS et M.H. WOOD, « A simple operational gas release and swelling model : Intragranular gas », J. Nucl. Mater., 1980, 91, 35
- [16] J.H. EVANS, « The role of directed bubble diffusion to grain boundaries in post-irradiation fission gas release from UO<sub>2</sub> : a quantitative assessment », J. Nucl. Mater., 1996, 238, 175
- [17] D. FRANCOIS, A. PINEAU, A. ZAOUI, «Comportement mécanique des matériaux ; Elasticité et Plasticité», Hermès, Paris, 1995
- [18] Th. GRENET, Ph. DEHAUDT, « Analyse bibliographique des modèles de nucléation homogène de gaz dans les matériaux appliquée au cas des gaz de fission dans les combustibles nucléaires », Note interne CEA, 1993
- [19] M.E. GULDEN, « Migration of gas bubbles in irradiated uranium dioxide », J. Nucl. Mater., 1967, 23, 30
- [20] S. KASHIBE et al., »Formation and growth of intragranular fission gas bubbles in UO<sub>2</sub> fuels with burnup of 6-83 GWd/t », J. Nucl. Mater., 1993, 206, 22
- [21] J.A. TURNBULL, « The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide », J. Nucl. Mater., 1982, 107, 168
- [22] C. BAKER, « The migration of intragranular fission gas bubbles in irradiated uranium dioxide », J. Nucl. Mater., 1977, 71, 117
- [23] Hj. MATZKE, « Gas release mechanisms in UO<sub>2</sub> - A critical review », Radiation Effects, 1980, 53, 219
- [24] G.W. GREENWOOD et M.V. SPEIGHT, « An analysis of the diffusion of fission gas bubbles and its effect on the behaviour of reactor fuels », J Nucl. Mater., 1963, 10(2), 140
- [25] R.M.CORNELL et G.H. BANNISTER, « The migration of Krypton bubbles in uranium dioxide », Proc. Br. Ceram. Soc., 1967, 7, 335

- [26] J.H. EVANS, « Bubble diffusion to grain boundaries in  $\text{UO}_2$  and metals during annealing : a new approach », *J. Nucl. Mater.*, 1994, 210, 21
- [27] J.H. EVANS, « Inert gas release from metals and  $\text{UO}_2$  during high temperature annealing : the role of thermal vacancies », *J. Nucl. Mater.*, 1995, 225, 302
- [28] Hj. MATZKE, « Atomic mechanisms of mass transport in ceramic nuclear fuel materials », *J. Chem. Soc. Faraday Trans.*, 1990, 86(8), 1243
- [29] W. INTHOFF et K.ZIMEN, *Trans. Chalmers Univ. Techn.*, 1956, 176,
- [30] A.H. BOOTH, « A method of calculating fission gas diffusion from  $\text{UO}_2$  fuel and its application to the X-2-f loop test », CRDC-721, 1957
- [31] J. BENARD, A. MICHEL, J. PHILIBERT et J. TALBOT; « *Métallurgie générale* », Masson, Paris, 1991
- [32] G.T. LAWRENCE, « A review of the diffusion coefficient of fission product rare gases in uranium dioxide », *J. Nucl. Mater.*, 1978, 71, 195
- [33] C. RONCHI et Hj. MATZKE, « Precipitation of Xe and Cs into bubbles, kinetics of bubble migration and alternative release processes », *Europ. Appl. Reports*, 1984, 5(6), 1105
- [34] M. COSTER et J.L. CHERMANT, *Précis d'analyse d'images*, Presses du CNRS, 1989
- [35] J. SERRA, « *Image analysis and mathematical morphology* », Academic Press, London, 1982
- [36] G. GOUGEON, Thèse de doctorat, « Etude par analyse d'images de la forme et de la texture d'alliages Al-Si », Université de Caen, 1988
- [37] N. OTSU, « A threshold selection method from gray levels histograms », *IEEE Trans. Syst. Man. Cybern.*, 1979, 9, 62
- [38] R. ZEBOU DJ, Thèse de doctorat, « Filtrage, Seuillage automatique, Contraste et contours : du prétraitement à l'analyse d'images », Université de St Etienne, 1988
- [39] G. MATHERON, *Les variables régionalisées et leur estimation*, Masson, Paris, 1965

- [40] A. OOSTERLYNCK, « Elaboration d'un modèle de gonflement et de relâchement des gaz de fission en transitoire », Rapport interne CEA, 1993
- [41] Th. BREDEL, « Production de gaz de fission Xe et Kr dans les combustibles UO<sub>2</sub> et MOX », Rapport interne CEA, 1993
- [42] Ph. DEHAUDT, « Microstructure de l'UO<sub>2</sub> dans un large domaine de taux de combustion et de température - Impacts sur les mécanismes de relâchement des gaz de fission », Compte-rendu CEA, 1993
- [43] Communication privée au C.E.N.G. (C. LEMAIGNAN, Ph. DEHAUDT, J.P. PIRON, L. CAILLOT, G. DELETTE, T. PETIT, A. MOCELIN, F. HUET)
- [44] J.Y. BLANC, « Synthèse d'examens », Rapport interne CEA, 1995
- [45] L. BELIN, Procédure interne CEA, « Détermination de la masse volumique d'un combustible irradié », 1993
- [46] Th. BREDEL, Procédure interne CEA, « Calcul de la densité », 1993
- [47] C. BAKER et J.C. KILLEEN, « Fission gas release during post irradiation annealing of UO<sub>2</sub> », BNES Conf. on Materials for nuclear core Applications, Paper 24, 1987
- [48] S. KASHIBE et K. UNE, « Fission gas release during post irradiation annealing of BWR fuels », J. of Nucl. Sci. Techn., 1990, 27(11), 1002
- [49] L. BELIN et I. ZACHARIE, « Etude de l'étalonnage du four de la cellule I4 », Note interne CEA, 1995
- [50] J.A. TURNBULL, « The mobility of intragranular bubbles in uranium dioxide during irradiation », J. Nucl. Mater., 1976, 62, 325
- [51] G.L. REYNOLDS et B. BURTON, « Grain boundary diffusion in uranium dioxide : the correlation between sintering and creep and reinterpretation of creep mechanism », J. Nucl. Mater., 1979, 82, 22
- [52] J.R. MATTHEWS et M.H. WOOD, « A simple operational gas release and swelling model : Intergranular gas », J. Nucl. Mater., 1980, 91, 241

[53] R.T. DEHOFF, F.N. RHINES, « Microscopie quantitative », Masson, 1972

[54] J.W. CAHN, J. NUTTING, Trans. AIME, 1959, 215, 526

[55] M. COSTER, Thèse de doctorat ès-Sciences, « Application des méthodes quantitatives et stéréologiques à l'étude de la croissance et des caractéristiques mécaniques d'échantillons polyphasés », Université de Caen, 1974

[56] M. SCHMITT, J. MATTIOLI, Morphologie Mathématique, Masson, Paris, 1994

## **LISTE DES TABLEAUX ET DES FIGURES**

## **LISTE DES TABLEAUX**

Tableau 1 : Taux de création des principaux produits de fission en R.E.P. par la fission de l'uranium 235, à un taux de combustion de 45 GWj/tU et un enrichissement initial en  $^{235}\text{U}$  de 4,25%

Tableau 2 : Relations stéréométriques dans le cas de l'analyse locale

Tableau 3 : Données de fabrication de pastilles d' $\text{UO}_2$  vierges

Tableau 4 : Isotopes de Krypton et de Xénon

Tableau 5 : Traitements thermiques effectués

Tableau 6 : Relâchement des gaz de fission en fonction de la température et du temps

Tableau 7 : Comparaison des mesures effectuées par les techniques de pesée hydrostatique et de pycnométrie à hélium sur une pastille de carbure de bore

Tableau 8 : Gonflement déterminé par la technique de pesée hydrostatique en fonction du temps et de la température

Tableau 9 : Comparaison de la masse volumique du vernis par pesée hydrostatique dans l'eau et dans le bromobenzène

Tableau 10 : Compatibilité chimique du vernis et du liquide de pesée

Tableau 11 : Comparaison des mesures effectuées sur des morceaux d' $\text{UO}_2$  par pesée hydrostatique avec vernissage dans l'eau et dans le bromobenzène

Tableau 12 : Comparaison des masses volumiques déterminées par pesée hydrostatique avec vernissage et par une mesure géométrique sur des fragments de combustible  $\text{UO}_2$

Tableau 13 : Comparaison de la mesure de la masse volumique déterminée par pesée hydrostatique et de celle obtenue par pesée hydrostatique avec vernissage, corrigée de 5'', sur un échantillon d' $\text{UO}_2$  2 cycles

Tableau 14 : Reproductibilité de la mesure

Tableau 15 : Gonflement estimé par la technique de pesée hydrostatique avec vernissage en fonction du temps et de la température

Tableau 16 : Influence du masque de mesure

Tableau 17 : Comparaison du seuillage manuel et du seuillage automatique

Tableau 18 : Seuillage manuel effectué par deux opérateurs, à des instants différents

Tableau 19 : Influence du seuillage sur la précision de la mesure

Tableau 20 : Influence du réglage de la netteté

Tableau 21 : Gonflement intergranulaire déterminé par analyse d'images en fonction du temps et de la température à un grandissement de 2000

Tableau 22 : Gonflement intergranulaire déterminé par analyse d'images en fonction du temps et de la température à un grandissement de 3500

Tableau 23 : Comparaison des résultats de gonflement obtenues par les trois méthodes

Tableau 24 : Nombre de bulles pour un mm de longueur de joint de grain en fonction du temps de traitement et de la température

Tableau 25 : Rayon moyen des bulles, en fonction du temps de traitement et de la température, obtenu à partir des mesures par analyse d'images à un grandissement de 2000

Tableau 26 : Rayon moyen des bulles, en fonction du temps de traitement et de la température, obtenu à partir des mesures par analyse d'images à un grandissement de 3500

Tableau 27 : Taille des grains de l'échantillon irradié, non traité et de deux échantillons irradiés, traités thermiquement

Tableau 28 : Coefficient de diffusion empirique du Xénon en fonction de la température

Tableau 29 : Coefficient de diffusion empirique du Krypton en fonction de la température

Tableau 30 : Coefficient  $C_T$  en fonction de la température

## LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Assemblage combustible

Figure 2 : Crayon combustible

Figure 3 : Structure cristalline de l' $\text{UO}_2$  stoechiométrique

Figure 4 : Pastille de combustible

Figure 5: Distribution radiale de la température dans une pastille combustible

Figure 6 : Schéma d'un transitoire de puissance

Figure 7 : Distribution des produits de fission

Figure 8 : Evolution géométrique de la pastille et de la gaine en fonctionnement normal

Figure 9 : Forme de diablo

Figure 10 : Bulles de gaz de fission dans un combustible

Figure 11: Schéma d'une bulle lenticulaire sur un joint de grain d'énergie  $\gamma_j$  alors que l'énergie de surface vaut  $\gamma_s$

Figure 12 : Mécanisme de migration des bulles par diffusion à la surface

Figure 13 : Mécanisme de migration des bulles par diffusion en volume

Figure 14 : Ligne de cellules

Figure 15 : Etat de fissuration d'une pastille d' $\text{UO}_2$  ayant fonctionné en R.E.P.

Figure 16 : Élément cubique contenant de la porosité

Figure 17 : Surface d'un joint de grain

Figure 18 : Ensemble d'objets X

Figure 19 : Erosion de l'ensemble d'objets de la Figure 18 par un élément structurant circulaire

Figure 20 : Dilatation de l'ensemble d'objets de la Figure 18 par un élément structurant circulaire

Figure 21 : Morceaux de combustible  $\text{UO}_2$  irradié

Figure 22 : Distribution de la porosité de fabrication

Figure 23 : Spectrométrie gamma effectuée sur une longueur de 350 mm, du combustible  $\text{UO}_2$  irradié (25 GWj/tU), dans laquelle ont été prélevés les échantillons

Figure 24 : Historique de puissance du combustible  $\text{UO}_2$  irradié (25 GWj/tU) dans lequel ont été prélevés les échantillons

Figure 25 : Distribution radiale du Xénon, d'un combustible  $\text{UO}_2$ , ayant fonctionné pendant 2 cycles

Figure 26 : Gradient maximal de température vu par le combustible  $\text{UO}_2$  étudié, lors de son irradiation en R.E.P.

Figure 27 : Evolution de la masse de Xénon et de Krypton en fonction du temps de refroidissement, pour un taux de combustion de 21 GWj/tU

Figure 28 : Vue de l'ensemble de l'installation de traitements thermiques

Figure 29 : Chauffage par induction

Figure 30 : Etalonnage du four H.F.

Figure 31 : Vitesse de montée en température

Figure 32 : Relâchement du Xénon, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

Figure 33 : Balance en cellule

Figure 34 : Dispositif d'imprégnation sous vide

Figure 35 : Gonflement déterminé par la technique de pesée hydrostatique, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

Figure 36 : Procédure expérimentale de pesée hydrostatique avec vernissage

Figure 37 : Gonflement estimé par la technique de pesée hydrostatique avec vernissage, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

Figure 38 : Ensemble des signaux émis à partir d'une sonde électronique

Figure 39 : M.E.B. et ses équipements

Figure 40 : Micrographies au M.E.B. d'un combustible  $UO_2$  en mode secondaire (photo A) et en mode rétrodiffusé (photo B)

Figure 41 : Modes de fonctionnement du détecteur d'électrons rétrodiffusés et secondaires

Figure 42 : Comparaison de l'observation d'un échantillon d'étain sans (photo A) et avec une source irradiante (photo B)

Figure 43 : Principe de fonctionnement du détecteur d'électrons rétrodiffusés

Figure 44 : Image M.E.B. d'un échantillon d'étain obtenue en déplaçant une source radioactive le long du détecteur d'électrons rétrodiffusés

Figure 45 : Préparation métallographique des échantillons

Figure 46 : Images en mode rétrodiffusé d'un échantillon d' $UO_2$  ayant fonctionné pendant 2 cycles et traité à  $1545^{\circ}C$  - 1 heure

Figure 47 : Histogramme d'une image sur 256 niveaux de gris

Figure 48 : Détermination du nombre de champs minimal

Figure 49 : Implantation des champs dans la zone d'études

Figure 50 : Comparaison de l'entropie et de l'histogramme d'une image

Figure 51 : Images seuillées par maximisation d'entropie

Figure 52 : Comparaison d'une image binaire brute (photo A) et d'une image binaire érodée et reconstruite (photo B)

Figure 53 : Filtrage des images par une taille d'élément variable

Figure 54 : Variogramme d'un échantillon traité thermiquement à 1715°C pendant 1h

Figure 55 : Comparaison de la distribution statistique expérimentale et de la loi théorique de Laplace-Gauss

Figure 56 : Influence du polissage

Figure 57: Gonflement intergranulaire déterminé par analyse d'images, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

Figure 58 : Distribution de la porosité intergranulaire par granulométrie : Effet du temps de traitement

Figure 59 : Distribution de la porosité intergranulaire par granulométrie : Effet de la température

Figure 60 : Superposition des résultats de gonflement obtenus par les trois méthodes et du relâchement du Xénon, en fonction du temps de traitement à 1545°C et 1715°C

Figure 61 : Gonflement intragranulaire en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

Figure 62 : Gonflement intergranulaire et gonflement intragranulaire, en fonction de la température, pour un temps de traitement de 60 mn

Figure 63 : Porosité ouverte en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

Figure 64 : Comparaison de la porosité ouverte et de la porosité intergranulaire pour une température de 1545°C et une température de 1715°C

Figure 65 : Formation de bulles intergranulaires d'un combustible UO<sub>2</sub> irradié (25 GWj/tU), suite à un traitement thermique

Figure 66 : Examens micrographiques des échantillons (a, b, c, d, e)

Figure 67 : Nombre de bulles pour un mm de longueur de joint de grain, en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

Figure 68 : Rayon de la surface du joint occupée par une bulle lenticulaire en fonction du temps de traitement, pour différentes températures

Figure 69: Formation de bulles intragranulaires d'un combustible  $UO_2$  irradié (25 GWj/tU), lors d'un traitement thermique à 1715°C

Figure 70 : Taille des grains avant et après traitements thermiques à 1410°C et à 1715°C (attaque chimique)

Figure 71 : Machine de fracturation des échantillons

Figure 72 : Etat de surface d'un échantillon fracturé

Figure 73 : Examen au M.E.B. des fractures d'échantillons (25 GWj/tU) non traités et traités thermiquement : Bulles intergranulaires - Interconnexion des bulles - Tunnels

Figure 74 : Hétérogénéité du faciès des joints de grain ( examen au M.E.B. d'un échantillon fracturé (25 GWj/tU) traité thermiquement à 1410°C/5h).

Figure 75 : Faciès de rupture des fractures d'échantillons (25 GWj/tU) non traités et traités thermiquement

Figure 76 : Formation de bulles intragranulaires dans un échantillon fracturé (25 GWj/tU) traité à 1715°C pendant 5 heures

Figure 77 : Examen de précipités de produits de fission sur des fractures d'échantillons (25 GWj/tU) non traités et traités thermiquement

Figure 78 : Présentation schématique de la cinétique de relâchement des gaz de fission, lors d'un traitement thermique

Figure 79 : Relâchement des gaz de fission pour une température de 1545°C et détermination du temps de transition à partir duquel le relâchement est contrôlé par la diffusion des atomes de gaz de fission vers les joints de grain

Figure 80 : Relâchement du Xénon, en fonction de la racine carrée du temps de traitement, pour différentes températures

Figure 81 : Coefficient de diffusion empirique  $D'$  du Xénon, en fonction de l'inverse de la température

Figure 82 : Coefficient de diffusion empirique  $D'$  du Krypton, en fonction de l'inverse de la température

Figure 83 : Analyse de la dispersion des points expérimentaux du relâchement du Xénon à 1715°C

Figure 84 : Cycles de température sur un même échantillon, en fonction du temps de traitement

Figure 85 : Comparaison des coefficients de diffusion empiriques obtenus par deux études expérimentales différentes : des traitements thermiques sur des échantillons différents et des cycles de température sur un même échantillon

Figure 86 : Relâchement des gaz de fission par formation de tunnels, pour différentes températures

Figure 87 : Superposition des différents mécanismes du relâchement du Xénon, en fonction du temps de traitement pour une température de 1545°C

Figure 88 : Contribution du relâchement du Xénon par formation de tunnels au relâchement total, en fonction du temps de traitement, pour deux températures différentes

Figure 89 : Contribution du relâchement du Xénon par formation de tunnels au relâchement total, en fonction de la température, pour deux temps de traitement différents

Figure 90 : Coefficients de diffusion apparents des gaz de fission (Xénon et Krypton), en fonction de l'inverse de la température

Figure 91 : Gonflement intergranulaire des échantillons traités, rapporté à la température, en fonction du nombre de bulles pour 1mm de longueur de joint de grain rapporté à la température du combustible étudié

Figure 92 : Schéma d'évolution du rayon de courbure des bulles intergranulaires en fonction du temps, lors d'un traitement thermique

Figure 93 : Gonflement intergranulaire des échantillons traités rapporté à la température en fonction du temps de traitement, pour différentes températures (coordonnées logarithmiques)

Figure 94 : Evolution du logarithme népérien du coefficient  $C_T/T^{1/5,4}$  en fonction de l'inverse de la température

Figure 95 : Gonflement intergranulaire des échantillons traités, rapporté à la température en fonction du temps de traitement corrigé de l'influence de la température (coordonnées logarithmiques)

## **ANNEXES**

## ANNEXE 1 : Modèle de relâchement des gaz de fission isotherme hors pile

Le modèle exposé ci-dessous, développé par A.H. Booth, est présenté par D. Olander [4]. A.H. BOOTH a appliqué la théorie de la diffusion classique au mécanisme de relâchement des gaz de fission dans une sphère de combustible de rayon  $a$ .

Les atomes de gaz de fission dans la matrice ont à nouveau été créés par une irradiation préalable à basse température dans un réacteur nucléaire. A l'instant initial avant le traitement thermique, la concentration en gaz est égale à  $c_0$ . Sous l'effet de la température, les atomes deviennent mobiles. La décroissance radioactive, lors du traitement, est négligée.

La sphère est considérée comme un milieu homogène, sans défauts (bulles, pores de fabrication, dislocations, joints de grain...). Les effets de ces pièges seront pris en compte dans le coefficient de diffusion apparent  $D$ .

L'équation de diffusion est donnée par :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial c}{\partial r} \right) \quad (\text{A.1})$$

où  $c$  est la concentration en gaz de fission,  $D$  est le coefficient de diffusion apparent des gaz de fission dans la sphère.

Les conditions initiales et aux limites sont :

$$C(r,0) = C_0$$

$$C(0,t) = \text{finie}$$

$$C(a,t) = 0$$

Le flux d'atomes qui sort de la sphère est :

$$J = -D \left( \frac{\partial c}{\partial r} \right)_a \quad (\text{A.2})$$

La fraction de gaz relâché qui sort de la sphère après un traitement thermique d'une durée  $t$  est donnée par :

$$f = \frac{4\pi a^2 \int_0^t J \cdot d\tau}{4\pi a^3 c_0 / 3} = \frac{3}{a c_0} \int_0^t J \cdot d\tau \quad (\text{A.3})$$

On va résoudre l'équation de diffusion (A.1) par la méthode de la transformation de Laplace. On effectue tout d'abord le changement de variable suivant :

$$\eta = \frac{r}{a}$$

$$\tau = \frac{D \cdot t}{a^2}$$

$$u = \frac{r}{a} \cdot \frac{c}{c_0} = \eta \frac{c}{c_0}$$

L'équation de diffusion (A.1) devient :

$$\frac{\partial u}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 u}{\partial \eta^2}$$

avec les conditions initiales et aux limites suivantes :

$$u(\eta, 0) = \eta$$

$$u(0, \tau) = 0$$

$$u(1, \tau) = 0$$

Multiplions les deux membres de l'égalité par  $e^{-p\tau} d\tau$ , et intégrons par rapport à  $\tau$  de 0 à  $\infty$  :

$$\int_0^{\infty} e^{-p\tau} \frac{\partial u}{\partial \tau} d\tau = \int_0^{\infty} \frac{\partial^2 u}{\partial \eta^2} e^{-p\tau} \cdot d\tau$$

Intégrons par partie le premier terme :

$$\int_0^{\infty} e^{-p\tau} \frac{\partial u}{\partial \tau} d\tau = [e^{-p\tau} \cdot u]_0^{\infty} + p \int_0^{\infty} e^{-p\tau} u d\tau = -\eta + p \bar{u}$$

En inversant l'ordre de différentiation et d'intégration, le second terme devient :

$$\int_0^{\infty} \frac{\partial^2 u}{\partial \eta^2} e^{-p\tau} \cdot d\tau = \frac{\partial^2 \tilde{u}}{\partial \eta^2}$$

Donc, en définitive :

$$-\eta + p \tilde{u} = \frac{\partial^2 \tilde{u}}{\partial \eta^2}$$

Les conditions aux limites sont :

$$\tilde{u}(0) = 0$$

$$\tilde{u}(1) = 0$$

La solution de l'équation différentielle est de la forme :

$$\tilde{u}(\eta) = -\frac{1}{p} \frac{e^{p/2\eta} - e^{-p/2\eta}}{e^{p/2} - e^{-p/2}} + \frac{\eta}{p} \quad (\text{A.4})$$

La transformée de Laplace du flux donné par l'équation (A.2) est :

$$\tilde{J} = -\frac{D \cdot c_0}{a} \left[ \left( \frac{d\tilde{u}}{d\eta} \right)_1 - \tilde{u}(1) \right]$$

Or en remplaçant  $\tilde{u}(\eta)$ , on obtient :

$$\tilde{J} = -\frac{D \cdot c_0}{a} \left[ \frac{1}{p^{1/2}} \left( \frac{e^{p/2} + e^{-p/2}}{e^{p/2} - e^{-p/2}} \right) - \frac{1}{p} \right] = -\frac{D \cdot c_0}{a} \left[ \frac{1}{p^{1/2}} \tanh(p^{1/2}) - \frac{1}{p} \right]$$

La transformée de Laplace associée à  $\tau$  est  $1/p^2$ . Si on considère que  $\tau$  est très petit, la variable  $p$  de la transformée de Laplace est donc très grande. Le terme  $\tanh(p/2)$  peut alors être pris égal 1. C'est « l'approximation des temps courts ».

A partir des tables de transformée de Laplace et de l'approximation des temps courts, on déduit :

$$J = \frac{D \cdot c_0}{a} \left[ \frac{1}{(\pi \tau)^{1/2}} - 1 \right]$$

Le relâchement f de l'équation (A.3) est alors donné par :

$$f(\%) = \left( \frac{6}{\sqrt{\pi}} \cdot \left( \frac{Dt}{a^2} \right)^{1/2} - 3 \cdot \left( \frac{Dt}{a^2} \right) \right) \times 100 \quad \text{où } t \text{ est le temps (s)}$$

On définit  $D'$  le coefficient de diffusion empirique tel que  $D' = D/a^2$

L'équation devient :

$$f(\%) = \left( \frac{6}{\sqrt{\pi}} \cdot (D't)^{1/2} - 3 \cdot (D't) \right) \times 100 \quad (\text{A.5})$$

Cette équation peut s'appliquer à des formes d'échantillons autres que des sphères.

Dans ce cas, a est défini par le rapport ci-dessous :

$$\frac{3}{a} = \frac{S}{V}$$

où S est la surface libre de l'échantillon (surface externe, aire des fissures et de la porosité ouverte) et V le volume de l'échantillon.

**ANNEXE 2 : Calcul de l'incertitude de la mesure de la masse volumique par la technique de pesée hydrostatique**

Mesures		Incertitudes expérimentales	
$P_1$ (g)	18,5021	$E_{P1}$ (g)	$\pm 10^{-4}$
$p_1$ (g)	16,7584	$E_{p1}$ (g)	$\pm 10^{-4}$
$P_2$ (g)	16,9906	$E_{P2}$ (g)	$\pm 5.10^{-4}$
$p_2$ (g)	15,5042	$E_{p2}$ (g)	$\pm 10^{-4}$
$d_1$ (g/cm <sup>3</sup> )	1,48995 (23,9°C)	$E_{d1}$ (g/cm <sup>3</sup> ) ( $\pm 0,1^\circ\text{C}$ )	$\pm 10^{-4}$
$d_a$ (g/cm <sup>3</sup> )	0,001178 (22,9°C)	$E_{da}$ (g/cm <sup>3</sup> ) ( $\pm 0,1^\circ\text{C}$ )	$\pm 10^{-6}$
Calcul de $\rho_{\text{VO}_2}$		Calcul de l'incertitude	
$a = P_1 - p_1$ (g)	1,7437	$E_a = \pm \sqrt{E_{P1}^2 + E_{p1}^2}$ (g)	$\pm \sqrt{2.10^{-4}}$
$c = (P_1 - p_1) - (P_2 - p_2)$ (g)	0,2573	$E_c = \pm \sqrt{E_{P1}^2 + E_{p1}^2 + E_{P2}^2 + E_{p2}^2}$ (g)	$\pm 5,3.10^{-4}$
$b = d_1 - d_a$ (g/cm <sup>3</sup> )	1,48877	$E_b = \pm \sqrt{E_{d1}^2 + E_{da}^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\pm 10^{-4}$
$A$ (g/cm <sup>3</sup> )	10,09	$E_A = \pm \frac{ab}{c} \sqrt{\left(\frac{E_a}{a}\right)^2 + \left(\frac{E_b}{b}\right)^2 + \left(\frac{E_c}{c}\right)^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\pm 2.10^{-2}$
$\rho_{\text{VO}_2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	10,09	$E_\rho = \pm \sqrt{E_A^2 + E_{da}^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\pm 2.10^{-2}$

**ANNEXE 3 : Mesures expérimentales de la masse volumique d'un échantillon d'UO<sub>2</sub> irradié (25 GWj/tU) par la technique de pesée hydrostatique avant et après traitement thermique**

- Avant traitement thermique  $\rho_i = 10,39 \text{ g/cm}^3$
- Après traitement thermique :

$\rho_f \text{ (g/cm}^3\text{)}$	Température (°C)				
Temps (mn)	1129	1409	1545	1627	1715
5		10,41	10,37	10,37	10,34
15					10,24
30			10,30		10,19
60		10,28	10,28	10,27	10,09
300	10,45	10,23	10,19	10,18	10,00
600			10,13		9,92

## ANNEXE 4

### A. Calcul de l'incertitude de la mesure de la masse volumique totale (UO<sub>2</sub>+verniss+cuivre) par la technique de pesée hydrostatique

Mesures		Incertitudes expérimentales	
P <sub>1</sub> (g)	17,8342	E <sub>P1</sub> (g)	±10 <sup>-4</sup>
p <sub>1</sub> (g)	15,8425	E <sub>p1</sub> (g)	±10 <sup>-4</sup>
P <sub>2</sub> (g)	16,8106	E <sub>P2</sub> (g)	±3,10 <sup>-3</sup>
p <sub>2</sub> (g)	15,1244	E <sub>p2</sub> (g)	±10 <sup>-4</sup>
Calcul de ρ <sub>t</sub>		Calcul de l'incertitude	
a = P <sub>1</sub> -p <sub>1</sub> (g)	1,9917	$E_a = \pm\sqrt{E_{P1}^2 + E_{p1}^2}$ (g)	±√2.10 <sup>-4</sup>
c = (P <sub>1</sub> -p <sub>1</sub> )-(P <sub>2</sub> -p <sub>2</sub> ) (g)	0,3055	$E_c = \pm\sqrt{E_{P1}^2 + E_{p1}^2 + E_{P2}^2 + E_{p2}^2}$ (g)	±2.10 <sup>-3</sup>
d <sub>l</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	0,998704 (17,4°C)	E <sub>d<sub>l</sub></sub> (g/cm <sup>3</sup> ) (±0,1°C)	±10 <sup>-4</sup>
d <sub>a</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	0,001199 (17,7°C)	E <sub>d<sub>a</sub></sub> (g/cm <sup>3</sup> ) (±0,1°C)	±10 <sup>-6</sup>
b = d <sub>l</sub> -d <sub>a</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	0,997505	$E_b = \pm\sqrt{E_{d_l}^2 + E_{d_a}^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	±10 <sup>-4</sup>
A (g/cm <sup>3</sup> )	6,503	$E_A = \pm \frac{ab}{c} \sqrt{\left(\frac{E_a}{a}\right)^2 + \left(\frac{E_b}{b}\right)^2 + \left(\frac{E_c}{c}\right)^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	±3.10 <sup>-2</sup>
ρ <sub>t</sub> (g/cm <sup>3</sup> )	6,504	$E_{\rho_t} = \pm\sqrt{E_A^2 + E_{d_a}^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	±3.10 <sup>-2</sup>

**B. Calcul d'incertitude de la mesure de la masse volumique de l'UO<sub>2</sub> par la technique de pesée hydrostatique avec vernissage**

Mesures		Incertitudes expérimentales	
$m_{cu}$ (g)	1,1765	$E_{m_{cu}}$ (g)	$\pm 10^{-4}$
$\rho_{cu}$ (g/cm <sup>3</sup> )	8,924	$E_{\rho_{cu}}$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\pm 10^{-3}$
$\rho_{vernis}$ (g/cm <sup>3</sup> )	1,265	$E_{\rho_{vernis}}$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\pm 2 \cdot 10^{-2}$
$\rho_t$ (g/cm <sup>3</sup> )	6,7066	$E_{\rho_t}$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\pm 3 \cdot 10^{-2}$
$m_{uo2}$ (g)	1,5323	$E_{m_{uo2}}$ (g)	$\pm 10^{-4}$
$m_t$ (g)	2,88969	$E_{m_t}$ (g)	$\pm 10^{-4}$
Calcul de $\rho_{uo2}$		Calcul de l'incertitude	
$a = \frac{m_t}{\rho_t}$ (cm <sup>3</sup> )	0,431	$E_a = \pm \frac{m_t}{\rho_t} \sqrt{\left(\frac{E_{m_t}}{m_t}\right)^2 + \left(\frac{E_{\rho_t}}{\rho_t}\right)^2}$ (cm <sup>3</sup> )	$\pm 2 \cdot 10^{-3}$
$b = \frac{m_{cu}}{\rho_{cu}}$ (cm <sup>3</sup> )	0,132	$E_b = \pm \frac{m_{cu}}{\rho_{cu}} \sqrt{\left(\frac{E_{m_{cu}}}{m_{cu}}\right)^2 + \left(\frac{E_{\rho_{cu}}}{\rho_{cu}}\right)^2}$ (cm <sup>3</sup> )	$\pm 2 \cdot 10^{-5}$
$d = m_t - m_{cu} - m_{uo2}$ (g)	0,18	$E_d = \pm \sqrt{E_{m_t}^2 + E_{m_{cu}}^2 + E_{m_{uo2}}^2}$ (g)	$\pm 3 \cdot 10^{-4}$
$c = \frac{d}{\rho_{vernis}}$ (cm <sup>3</sup> )	0,14	$E_c = \pm \frac{d}{\rho_{vernis}} \sqrt{\left(\frac{E_d}{d}\right)^2 + \left(\frac{E_{\rho_{vernis}}}{\rho_{vernis}}\right)^2}$ (cm <sup>3</sup> )	$\pm 1 \cdot 10^{-4}$
$B = a - b - c$ (cm <sup>3</sup> )	0,159	$E_B = \pm \sqrt{E_a^2 + E_b^2 + E_c^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\pm 2 \cdot 10^{-3}$
$\rho_{uo2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	9,82	$E_{\rho_{uo2}} = \pm \frac{m_{uo2}}{B} \sqrt{\left(\frac{E_{m_{uo2}}}{m_{uo2}}\right)^2 + \left(\frac{E_B}{B}\right)^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\pm 0,12$

**C. Calcul de l'incertitude de la mesure du gonflement par la technique de pesée hydrostatique avec vernissage pour un traitement thermique de 1400°C pendant 5 heures**

Mesure		Incertitude de mesure	
$\rho_i$ (g/cm <sup>3</sup> )	9,82	$E_{\rho_i}$ (g/cm <sup>3</sup> )	±0,14
$\rho_f$ (g/cm <sup>3</sup> )	9,45	$E_{\rho_f}$ (g/cm <sup>3</sup> )	±0,13
$a = \rho_i - \rho_f$ (g/cm <sup>3</sup> )	0,37	$E_a = \pm \sqrt{E_{\rho_i}^2 + E_{\rho_f}^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	±0,19
G (%)	3,9	$E_{Gt} = \pm \frac{a}{\rho_f} \sqrt{\left(\frac{E_{\rho_f}}{\rho_f}\right)^2 + \left(\frac{E_a}{a}\right)^2}$ (%)	±2

⇒ Incertitude de mesure relative sur G (1400°C-5h) : 51%

**D. Calcul de l'incertitude de la mesure du gonflement par la technique de pesée hydrostatique avec vernissage pour un traitement thermique de 1700°C pendant 10 heures**

Mesure		Incertitude de mesure	
$\rho_i$ (g/cm <sup>3</sup> )	9,82	$E_{\rho_i}$ (g/cm <sup>3</sup> )	±0,14
$\rho_f$ (g/cm <sup>3</sup> )	8,573	$E_{\rho_f}$ (g/cm <sup>3</sup> )	±0,12
$a = \rho_i - \rho_f$ (g/cm <sup>3</sup> )	1,247	$E_a = \pm \sqrt{E_{\rho_i}^2 + E_{\rho_f}^2}$ (g/cm <sup>3</sup> )	±0,18
G (%)	14,6	$E_{Gt} = \pm \frac{a}{\rho_f} \sqrt{\left(\frac{E_{\rho_f}}{\rho_f}\right)^2 + \left(\frac{E_a}{a}\right)^2}$ (%)	±1,6

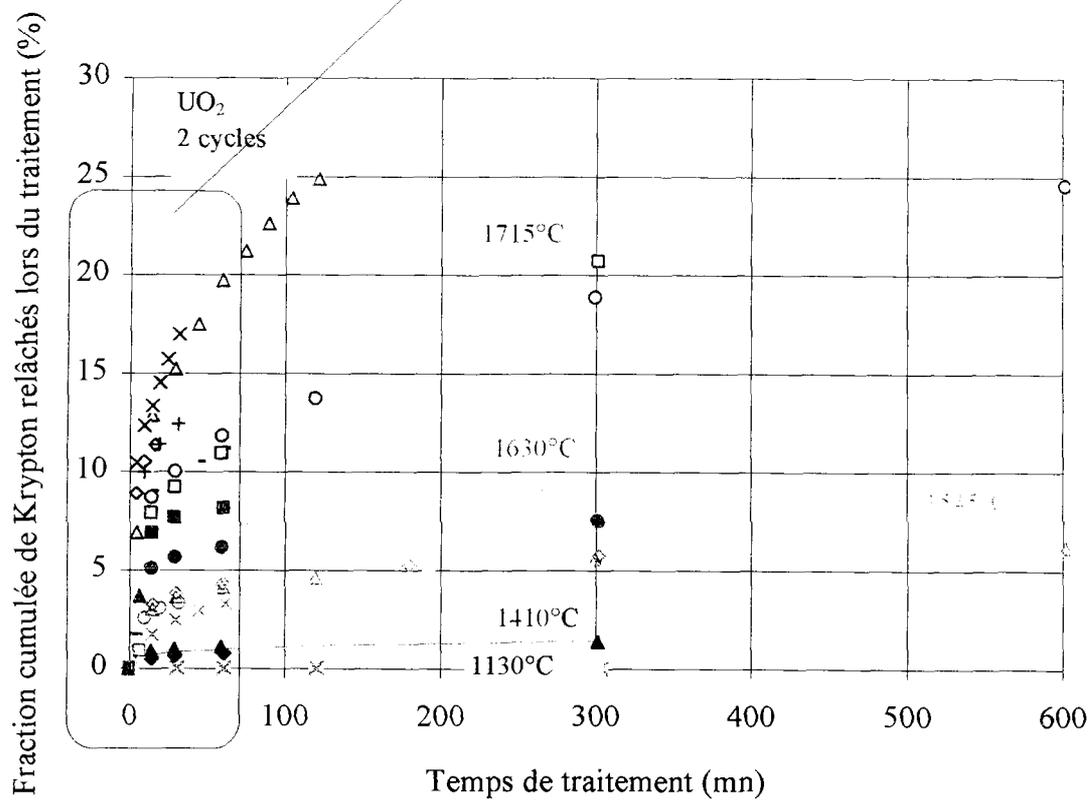
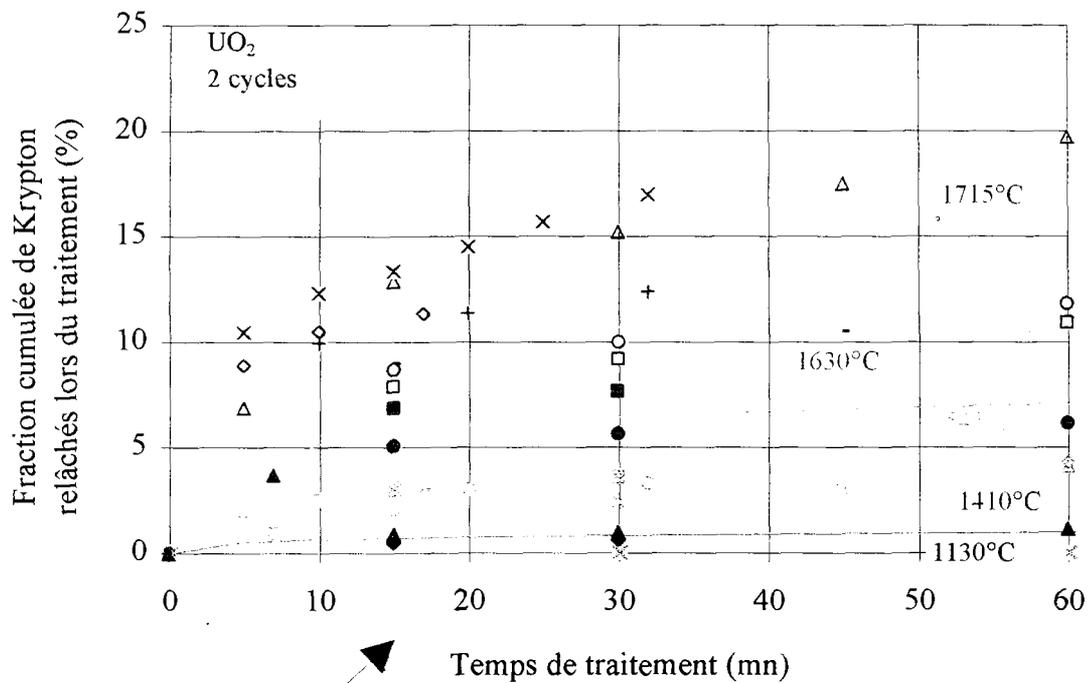
⇒ Incertitude de mesure relative sur G (1700°C-10h) : 11%

**ANNEXE 5 : Mesures expérimentales de la masse volumique d'un échantillon d'UO<sub>2</sub> irradié (25 GWj/tU) par la technique de pesée hydrostatique avec vernissage avant et après traitement thermique**

- Avant traitement thermique  $\rho_i = 9,82 \text{ g/cm}^3$
- Après traitement thermique :

$\rho_f \text{ (g/cm}^3\text{)}$	Température(°C)			
Temps (mn)	1409	1545	1627	1715
0	0,0	0,0	0,0	0,0
5	9,7	9,5	9,4	9,4
15				8,9
30				8,8
60	9,3	9,4	9,2	8,7
300	9,5	9,3	9,1	8,6
600		9,2		8,6

**ANNEXE 6 : Relâchement du Krypton en fonction du temps de traitement et de la température**



## ANNEXE 7

### A. Calcul du $\chi^2$ d'un échantillon traité thermiquement à 1700°C pendant 1 heure

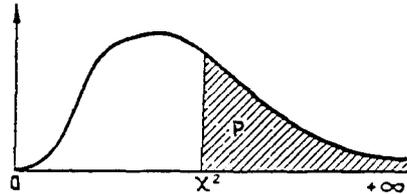
Fraction volumique (%)	$O_i$ (Fréquence expérimentale)	$T_i$ (Fréquence théorique)	$(O_i - T_i)^2 / T_i$
6,6	9	13,8754	1,713069545
7,1	17	16,5704	0,011137701
7,6	39	24,9018	7,981721933
8,1	28	30,2302	0,16453057
8,6	23	27,72	0,803694084
9,1	14	20,8054	2,226031182
9,6	13	11,7964	0,122804666
10,1	6	5,4208	0,061886187
10,8	5	2,2946	3,189745123

$\chi^2 = 16,27$

## B. Distribution du $\chi^2$ (Loi de Pearson)

Distribution de  $\chi^2$  (Loi de K. Pearson).

Valeur de  $\chi^2$  ayant la probabilité  $P$  d'être dépassée.



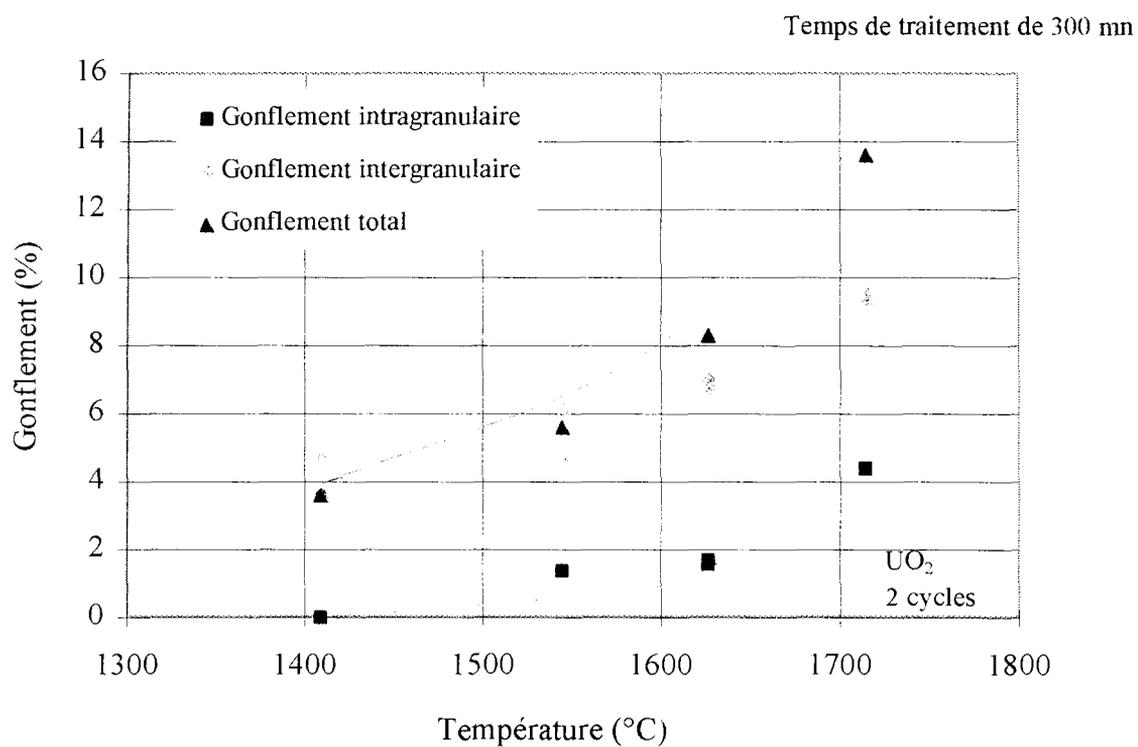
$\nu$	$P = 0.90$	0.80	0.70	0.50	0.30	0.20	0.10	0.05	0.02	0.01
1	0.0158	0.0642	0.148	0.455	1.074	1.642	2.706	3.841	5.412	6.635
2	0.211	0.446	0.713	1.386	2.408	3.219	4.605	5.991	7.324	9.210
3	0.584	1.005	1.424	2.366	3.665	4.642	6.251	7.815	9.837	11.345
4	1.064	1.649	2.195	3.357	4.878	5.989	7.779	9.488	11.668	13.277
5	1.610	2.343	3.000	4.351	6.064	7.289	9.236	11.070	13.388	15.086
6	2.204	3.070	3.828	5.348	7.231	8.558	10.645	12.592	15.033	16.812
7	2.833	3.822	4.671	6.346	8.383	9.803	12.017	14.067	16.662	18.475
8	3.490	4.594	5.527	7.344	9.524	11.030	13.362	15.507	18.168	20.090
9	4.168	5.380	6.393	8.343	10.656	12.242	14.684	16.919	19.679	21.666
10	4.865	6.179	7.267	9.342	11.781	13.442	15.987	18.307	21.161	23.209
11	5.578	6.989	8.148	10.341	12.899	14.631	17.275	19.675	22.618	24.725
12	6.304	7.807	9.034	11.340	14.011	15.812	18.549	21.026	24.054	26.217
13	7.042	8.634	9.926	12.340	15.119	16.985	19.812	22.362	25.472	27.688
14	7.790	9.467	10.821	13.339	16.222	18.151	21.064	23.685	26.873	29.141
15	8.547	10.307	11.721	14.339	17.322	19.311	22.307	24.996	28.259	30.578
16	9.312	11.152	12.624	15.338	18.418	20.465	23.542	26.296	29.633	32.000
17	10.085	12.002	13.531	16.338	19.511	21.615	24.769	27.587	30.995	33.409
18	10.865	12.857	14.440	17.338	20.601	22.760	25.989	28.869	32.346	34.805
19	11.651	13.716	15.352	18.338	21.689	23.900	27.204	30.144	33.687	36.191
20	12.443	14.578	16.266	19.337	22.775	25.038	28.412	31.410	35.020	37.566
21	13.240	15.445	17.182	20.337	23.858	26.171	29.615	32.671	36.343	38.932
22	14.041	16.314	18.101	21.337	24.939	27.301	30.813	33.924	37.659	40.289
23	14.848	17.187	19.021	22.337	26.018	28.429	32.007	35.172	38.968	41.638
24	15.659	18.062	19.943	23.337	27.096	29.553	33.196	36.415	40.270	42.980
25	16.473	18.940	20.867	24.337	28.172	30.675	34.382	37.652	41.566	44.314
26	17.292	19.820	21.792	25.336	29.246	31.795	35.563	38.885	42.856	45.642
27	18.114	20.703	22.719	26.336	30.319	32.912	36.741	40.113	44.140	46.963
28	18.939	21.588	23.647	27.336	31.391	34.027	37.916	41.337	45.419	48.278
29	19.768	22.475	24.577	28.336	32.461	35.139	39.087	42.557	46.693	49.588
30	20.599	23.364	25.508	29.336	33.530	36.250	40.256	43.773	47.962	50.892

Nota. —  $\nu$  est le nombre de degrés de liberté.

Pour  $\nu$  compris entre 30 et 100, on admettra que  $\sqrt{2\chi^2} - \sqrt{2\nu - 1}$  est approximativement distribué suivant la loi normale centrée réduite.

Pour  $\nu$  supérieur à 100, on admettra que  $(\chi^2 - \nu)/\sqrt{2\nu}$  est approximativement distribué suivant la loi normale centrée réduite.

**ANNEXE 8 : Gonflement intergranulaire et gonflement intragranulaire, en fonction de la température, pour un temps de traitement de 300 mn**



**ANNEXE 9 : Comparaison du nombre d'atomes de gaz relâchés et du nombre d'atomes de gaz dans les bulles intergranulaires pour un traitement de 1550°C/ 300 mn**

La fraction de gaz de fission relâchés par diffusion est estimée par la formule (V.5) du chapitre 5 rappelée ci dessous :

$$f = \frac{6}{\sqrt{\pi}} (32887 e^{-53527/T} t)^{1/2} \times 100$$

où le relâchement  $f$  s'exprime en %, la température  $T$  en K et le temps de traitement en s. Pour une température de 1550°C et un temps de 300 mn, on obtient 3,5%.

Pour un taux de combustion de 24675 MWj/tU, le nombre d'atomes de gaz de fission total est de  $2 \cdot 10^{20}$  atomes /cm<sup>3</sup>. Le nombre d'atomes de gaz de fission relâchés par diffusion est donc de  $7 \cdot 10^{18}$  atomes/cm<sup>3</sup>.

Le nombre d'atomes  $A$  dans 1 cm<sup>3</sup> de bulles intergranulaires se calcule par :

$$A = n \times N_v$$

où  $n$ , le nombre d'atomes de gaz par bulle, se déduit de la formule (II.15) du chapitre 2 et  $N_v$ , la concentration en bulles intergranulaires, est donnée par l'équation (II.8) du chapitre 3. A 1550°C/300 mn, le gonflement est de 5,5% et le nombre de bulles pour 1 mm longueur de joints de grains est de 885 bulles/mm. Le nombre d'atomes de gaz de fission contenus dans les bulles intergranulaires est donc de  $8 \cdot 10^{18}$  atomes/cm<sup>3</sup>.

**Le nombre d'atomes de gaz de fission relâchés par diffusion et le nombre d'atomes de gaz de fission contenus dans les bulles intergranulaires sont donc équivalents.**

Si une quantité équivalente au nombre d'atomes de gaz relâchés était absorbée par les bulles intergranulaires, cela reviendrait à doubler le nombre d'atomes de gaz de fission présents dans les bulles. Le gonflement engendré est de 15% soit 9,5% supplémentaire par rapport au 5,5% initial. Le gonflement de croissance par absorption d'atomes de gaz de fission n'est donc pas masqué par la coalescence des bulles. Ce mécanisme n'a certainement pas lieu. Les atomes de gaz de fission de la matrice se dirigent préférentiellement vers les tunnels où ils sont relâchés.