



INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, VIENNA, 1963

RADIATION DAMAGE IN REACTOR MATERIALS

PROCEEDINGS SERIES

RADIATION DAMAGE IN REACTOR MATERIALS

PART OF THE PROCEEDINGS OF THE SYMPOSIUM
ON RADIATION DAMAGE IN SOLIDS AND REACTOR MATERIALS
HELD BY THE INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
AT THE FONDAZIONE CINI,
S. GIORGIO MAGGIORE, VENICE, 7 - 11 MAY 1962

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
VIENNA, 1963

FOREWORD

Radiation damage has presented a new design parameter for the selection of materials to be used in fuel and cladding elements, moderators, structural components and pressure vessels in nuclear reactors. The severe and novel requirements for certain optimum combinations of physical and nuclear properties have emphasized the need for a better understanding of the basic mechanisms of radiation damage. This knowledge is not only essential for progress in the field of nuclear energy, but has direct applications to space technology and semi-conductor research as well. The IAEA, as part of its programme of promoting nuclear technology, therefore convened the Symposium on Radiation Damage in Solids and Reactor Materials, 7 - 11 May 1962. At the invitation of, and with generous material assistance from, the Government of Italy, the Symposium was held at Venice.

The Symposium was primarily concerned with the investigation of the fundamental processes of radiation that underlie the behaviour of metals, alloys and ceramics that are actually useful or potentially useful reactor materials. Two sessions were devoted to studies of irradiation effects on simple metals, as these effects are easiest to interpret. Other topics included general theory, alloys, fissionable and moderator materials and special experimental techniques for radiation damage studies. The properties influenced by irradiation which were of main concern were those of primary importance to the behaviour of solids as reactor materials (e. g. dimensional stability, phase transformation, radiation hardening, fracture, fission-gas escape from uranium and its compounds). Other properties, such as optical, electrical and magnetic properties, and effects on semi-conductors, ionic and other non-metallic crystals are also of interest in that these studies can increase our knowledge of the mechanism of radiation damage in solids and provide a tool for investigation into the physics of the solid state by offering a means of introducing controlled radiation damage. The subjects of corrosion and radiation chemistry were excluded.

The Symposium was attended by 220 participants from 24 Member States and one international organization. Of the 78 papers before the Symposium, 35 on radiation damage in solids generally and 3 on reactor materials were presented and discussed in full, while 35 papers formed the background for five panel discussions, which were introduced by five survey papers.

The present volume contains the survey papers and panel discussions on radiation damage in reactor materials, the 27 papers that formed the background to these discussions, and the 3 papers on this subject which were presented and discussed in full. With the three volumes published in 1962 and early 1963 under the title Radiation Damage in Solids, the present volume completes the proceedings of the Venice Symposium.

The Agency's thanks are particularly due to Dr. W. E. Roake and Mr. H. M. Mattys, of Hanford Laboratories, and to Professor J. H. W. Simmons, of Harwell, for kindly undertaking to edit the text of the panel discussions.

EDITORIAL NOTE

The papers and discussions incorporated in the proceedings published by the International Atomic Energy Agency are edited by the Agency's editorial staff to the extent considered necessary for the reader's assistance. The views expressed and the general style adopted remain, however, the responsibility of the named authors or participants.

For the sake of speed of publication the present Proceedings have been printed by composition typing and photo-offset lithography. Within the limitations imposed by this method, every effort has been made to maintain a high editorial standard; in particular, the units and symbols employed are to the fullest practicable extent those standardized or recommended by the competent international scientific bodies.

The affiliations of authors are those given at the time of nomination.

The use in these Proceedings of particular designations of countries or territories does not imply any judgment by the Agency as to the legal status of such countries or territories, of their authorities and institutions or of the delimitation of their boundaries.

The mention of specific companies or of their products or brand-names does not imply any endorsement or recommendation on the part of the International Atomic Energy Agency.

CONTENTS

A. RADIATION DAMAGE IN FISSIONABLE MATERIALS

1. Review of papers and panel discussion	3
(Reviewer and Moderator: A. Herpin)	
2. Full text of papers:	
Annealing kinetics of the quenched-in resistance of alpha-uranium	15
<i>B. D. Sharma and K. Tangri</i>	
Внутреннее трение в уране	27
<i>В. Е. Иванов и Б. И. Шаповал</i>	
The self-irradiation of plutonium and its delta alloys	35
<i>C. E. Olsen, R. O. Elliott and T. A. Sandenaw</i>	
The cracking of irradiated uranium	59
<i>R. G. Bellamy</i>	
Etude de la diffusion et de la précipitation des gaz rares dans les métaux	71
<i>M. G. Brebec, V. Lévy, J. Leteurre et Y. Adda</i>	
Swelling of uranium	95
<i>B. A. Loomis</i>	
Dimensional stability of uranium under irradiation	109
<i>J. H. Gittus, V. W. Eldred, A. Stuttard, G. Slattery and F. Chatterley</i>	
The effect of irradiation temperature and fission rate on the radiation stability of the uranium - 10 wt. % molybdenum alloy	133
<i>A. A. Shoudy, W. E. McHugh and M. A. Silliman</i>	
Quelques résultats d'irradiation sur les combustibles envisagés pour «Rapsodie»	163
<i>J. -P. Mustelier</i>	

B. RADIATION DAMAGE IN CERAMIC NUCLEAR FUEL

1. Review of papers and panel discussion	187
(Reviewer and Moderator: W. E. Roake)	
2. Full text of papers:	
Irradiation effects in fissile oxides and carbides at low and high burn-up levels	219
<i>B. R. T. Frost, B. T. Bradbury and L. B. Griffiths</i>	
The low-temperature irradiation behaviour of cast uranium carbide	241
<i>B. G. Childs, A. Ogilvie, J. C. Ruckman and J. L. Whitton</i>	
Effet de l'irradiation dans EL 3 sur les alliages uranium-carbone de composition voisine de UC préparés par frittage-réaction sous charge	275
<i>A. Accary, R. Darras et R. Caillat</i>	
Irradiation behaviour of uranium carbide fuels	287
<i>D. I. Sinizer, B. A. Webb and S. Berger</i>	
Effects of high burn-up on oxide ceramic fuels	319
<i>M. L. Bleiberg, R. M. Berman and B. Lustman</i>	
Irradiation alteration of uranium dioxide	429
<i>W. E. Roake</i>	
Irradiation experiments with fuel suspensions	459
<i>M. E. A. Hermans, H. S. G. Slooten and R. G. Sowden</i>	

C. RADIATION DAMAGE IN GRAPHITE

1. Review of papers and panel discussion: Recent progress in the study of radiation damage in graphite	475
<i>J. H. W. Simmons</i>	
Panel discussion	492
<i>(Moderator: J. H. W. Simmons)</i>	
2. Full text of papers:	
Etude comparative des effets des neutrons rapides sur le graphite monocristallin et le graphite nucléaire	499
<i>J. Blons, G. Perriot et G. Tourand</i>	
Irradiations neutroniques à 78°K de graphites polycristallins	509
<i>L. Bochirol, E. Bonjour et L. Weil</i>	
Mesures de paramètres de graphite industriel irradié dans l'azote liquide	523
<i>M. Pluchery</i>	
An effect of flux level and flux spectrum on the accumulation of damage in reactor-irradiated graphite	531
<i>H. Bridge, B. S. Gray, B. T. Kelly and H. Sørensen</i>	
Irradiation damage in graphite	553
<i>W. N. Reynolds and P. A. Thrower</i>	
A model of radiation damage in graphite	565
<i>T. Iwata and H. Suzuki</i>	
Radiation effects in carbons and graphites	581
<i>H. H. Yoshikawa, E. M. Woodruff, J. M. Davidson, J. W. Helm and R. E. Nightingale</i>	
The behaviour of various graphites under neutron irradiation	593
<i>E. Fitzer and O. Vohler</i>	
Comparison of irradiation damage in artificial and natural graphite at different irradiation temperatures	651
<i>R. Gain</i>	
Evolution des propriétés physiques de graphites sous l'effet d'irradiations et de recuits successifs	663
<i>J. Rappeneau, A. Fillatre, G. Micaud et M. Quetier</i>	
The effect of heavy-particle bombardment on Wigner-energy storage in graphite	685
<i>A. Willis and R. Penninckx</i>	

D. RADIATION DAMAGE IN BERYLLIUM OXIDE

Radiation damage in BeO	693
<i>G. W. Keilholtz, J. E. Lee, Jr., R. P. Shields and W. E. Browning, Jr.</i>	
Comportement de l'oxyde de béryllium fritté irradié par des neutrons	703
<i>J. Elston</i>	
Radiation effects in sintered BeO bodies of several compositions	725
<i>C. G. Collins</i>	
Chairmen of Sessions and Secretariat of the Symposium	747
List of Participants	749
Author Index	761

A. RADIATION DAMAGE IN FISSIONABLE MATERIALS

1. Review of papers and panel discussion

(Part of Session 5)

RADIATION DAMAGE IN FISSIONABLE MATERIALS: REVIEW OF PAPERS AND PANEL DISCUSSION

Moderator: A. HERPIN

A. HERPIN: C'est une situation assez difficile que de commencer dans cette série de tables rondes qui est organisée, car on ne sait pas tellement bien encore quelle méthode marchera le mieux pour que la discussion soit la plus animée possible et la plus fructueuse possible. C'est un problème, par conséquent, qui est particulièrement difficile pour celui que nous appelons, nous, un animateur et que, je crois, les anglo-saxons appellent un modérateur. C'est d'autant plus difficile quand il s'agit, comme aujourd'hui, d'un animateur qui n'est pas particulièrement spécialiste de la question qu'il aura besoin d'animer, ce qui lui donnera probablement l'occasion, au cours de cette séance, de poser quelques questions tout à fait naïves qui, j'espère, pourront peut-être animer un peu la discussion. La méthode que je me suis permis d'utiliser aujourd'hui va consister à faire non pas un exposé d'ensemble pour débiter, suivi d'une discussion d'ensemble, mais plutôt à faire un papier d'ensemble qui sera entrecoupé par des discussions sur les différents papiers qui seront présentés, lorsqu'ils trouveront naturellement leur place dans mon exposé. Je pense que ceci doit vous permettre d'avoir une discussion peut-être un peu moins ingrate qu'une discussion d'environ trois quarts d'heure d'affilée, qui risquerait de lasser l'auditoire.

Nous devons nous occuper aujourd'hui des propriétés des matières fissiles irradiées. Les matières fissiles généralement utilisées sont l'uranium-235 et le plutonium. En pratique, nous nous occuperons aujourd'hui uniquement de l'uranium métallique éventuellement enrichi, soit en uranium-235, soit en plutonium. Certains éléments peuvent être ajoutés pour former des alliages qui sont plus stables au cours de l'irradiation, car finalement le problème que nous allons rencontrer d'un bout à l'autre de cet exposé sera la possibilité d'utiliser les meilleures formes possibles, du point de vue physique, de ces matières fissiles, de manière à ce qu'au cours de l'irradiation elles puissent subir des taux de combustion suffisamment élevés sans conduire à des dommages géométriques par trop importants, qui pourraient entraîner un mauvais fonctionnement dans la pile. Par conséquent le problème ainsi défini reste celui de la résistance de ces alliages aux effets d'irradiation. Cette résistance va naturellement dépendre de paramètres physiques de l'uranium et, plus exactement, de l'alliage que nous allons utiliser, en particulier de ses propriétés mécaniques à chaud ou à froid, propriétés qui d'ailleurs ne seront pas discutées ici puisqu'il n'y a aucun papier sur ceci, et l'évolution de ces propriétés sous irradiation. C'est là un problème difficile dans l'uranium, infiniment plus difficile que pour les autres métaux irradiés: les propriétés physiques de l'uranium changent d'une manière beaucoup plus forte au cours de l'irradiation que celles des autres matières. Ces propriétés de résistance sont également liées à la structure cristalline. Cette structure cristalline, pour l'uranium alpha, est fortement anisotrope. Par conséquent les propriétés, la tenue des matériaux fissiles en pile, va dépendre très fortement de la grosseur des grains et également de l'orientation de ces grains. Comment déterminer ces paramètres - grosseur des

grains, orientation des grains? Il y a évidemment la méthode classique de la métallographie par laquelle on peut réussir à déterminer la grosseur et l'orientation. Il y a également, en ce qui concerne la recherche de cette orientation, les méthodes traditionnelles, utilisées depuis très longtemps, des rayons X. C'est une méthode qui est généralement fort difficile en pratique parce que fort longue, l'uranium étant un matériau qui se prête relativement mal à l'étude par la diffraction des rayons X. Une méthode plus nouvelle, qui a été utilisée depuis quelques années seulement, est l'étude des matériaux fissiles, en particulier de l'uranium, au moyen de la diffraction des neutrons. C'est une technique infiniment plus commode parce que, alors que les rayons X ne permettent d'examiner qu'une petite partie de la matière – la pénétration des rayons X étant très faible – les neutrons, grâce à une pénétration beaucoup plus grande, permettent d'examiner des éléments massifs et de déterminer les orientations des cristallites et le degré d'orientation des cristallites dans un barreau étiré par exemple. En plus de cette structure cristallographique il existe également d'autres facteurs extrêmement importants qui sont les structures physiques de la matière avec laquelle on veut faire des éléments combustibles. Cette structure physique est malheureusement assez souvent mal connue. Il s'agirait de savoir quelle est la quantité de dislocations. On a depuis quelques années observé une dislocation dans l'uranium; on a pu dans certains cas mesurer des densités de dislocation, mais malgré tout, ceci n'a pu être fait que dans des cas assez rares. Il y a également des défauts ponctuels, qui sont essentiellement des lacunes dans l'uranium. D'autres défauts sont les macles de l'uranium qui sont fréquentes. D'autres encore sont les fautes d'empilement – qui ne sont pas autre chose que des macles moins régulières – mais dont je crois que l'existence, à l'heure actuelle, n'a pas encore été mise en évidence. Malheureusement, cette structure physique ne peut être atteinte que par les procédés auxquels j'ai fait allusion tout à l'heure, qui sont la microscopie, qui a permis l'évaluation des dislocations et aussi par des mesures macroscopiques telles que des mesures mécaniques ou des mesures de conductibilité électrique. Il est généralement fort difficile de connaître, de relier les propriétés mécaniques avec la structure physique de la matière: je pense que nous pouvons être persuadés, depuis deux jours que nous entendons des exposés sur ce sujet, que nous n'avons pas encore trouvé de loi parfaitement rigoureuse. La conductibilité électrique est une méthode probablement un peu plus simple pour l'étude de ces défauts ponctuels. Ceci est valable pour une substance fissile qui serait pure; malheureusement, les substances que l'on utilise dans les réacteurs atomiques contiennent un assez grand nombre d'impuretés et les propriétés de l'uranium non irradié devront dépendre très fortement de la pureté et également – d'une manière qu'il est difficile de prévoir – de l'état dans lequel se trouvent les impuretés: ces impuretés peuvent être dissoutes dans le réseau ou au contraire peuvent être présentes à l'état de précipité par exemple selon les joints de grains. Par conséquent, on peut penser que cette étude de l'uranium ou des matières fissiles, d'une manière plus générale, non irradiées est un excellent préliminaire, malheureusement encore inachevé, à l'étude de la matière fissile irradiée. Nous avons déjà aujourd'hui dans cette conférence plusieurs exposés qui correspondent à des études de ces matières fissiles avant leur irradiation. Tout d'abord nous en avons un concernant des ex-

périences sur la cinétique du recuit de l'uranium alpha trempé; il s'agit d'un exposé de Messieurs Sharma et Tangri, Inde*. Malheureusement les auteurs ne sont pas là. Nous avons aussi un papier soviétique de Messieurs Ivanov et Chapokhval*. Malheureusement également ces deux auteurs ne sont pas là. Je pense que nous pouvons quand même les mettre en discussion aujourd'hui, bien que le problème soit un peu difficile en ce qui concerne le papier soviétique pour lequel je n'ai reçu que très tardivement un exemplaire en langue russe, ce qui m'a empêché de le lire d'une manière un peu détaillée; tout ce que nous pouvons faire, je crois, c'est nous contenter du résumé, heureusement assez long. Les auteurs commencent par exposer une nouvelle méthode de détermination du frottement interne dans les métaux dans laquelle, au lieu d'utiliser des oscillations forcées, on utilise des pulsations périodiques. Je crois que, d'après le résumé, il est à peu près impossible de savoir exactement quelle était la méthode qu'ils ont utilisée. Ils ont appliqué leur nouvelle méthode, dans un domaine d'amplitude suffisante pour que les valeurs de ce frottement interne ne dépendent pas de l'amplitude, à l'étude de l'uranium dans une gamme de températures comprises entre 20 et 500°. Ils ont observé un maximum de frottement interne à 250°. Ils semblaient d'abord avoir attribué ce résultat à une hydruration possible de l'uranium et, ayant pris des précautions pour réellement retirer le maximum d'hydrure d'uranium de leur échantillon, ils ont observé qu'il leur restait encore un effet notable qu'ils ont attribué à des tensions internes. Est-ce qu'on est réellement sûr que cette déshydruration avait été complète? C'était la question, je crois, qu'on aurait pu leur poser. Il est extrêmement difficile de retirer tout l'hydrogène de l'uranium. Il y a évidemment quelques procédés physiques pour savoir s'il reste de l'hydrure d'uranium. Je crois que l'un des procédés que nous avons étudié en France et qui est assez sensible, c'est l'étude des propriétés magnétiques – l'hydrure d'uranium présente un point de curie à basse température, ce qui permet, dès qu'il y a des traces d'hydrure d'uranium, de détecter un moment magnétique permanent. Je ne sais pas si nous devons discuter ce papier. En ce qui concerne le papier de Messieurs Sharma et Tangri, nous avons un texte plus complet. Par conséquent, je crois que je vais simplement résumer très rapidement ce qu'ils ont étudié. Ils ont fait des expériences sur des fines lamelles qu'ils ont refroidies très rapidement ce qui leur a donné une vitesse de trempe assez grande, et ils ont mesuré les variations de résistivité électrique due à l'existence des lacunes. Ils ont cherché comment cette résistivité électrique pouvait être guérie et ils ont pu proposer un mécanisme de la guérison à température ordinaire. En ce qui concerne la guérison à plus basse température, il semble bien qu'ils aient trouvé quelques difficultés. Je crois qu'une des questions qu'on aurait pu leur poser, c'est de savoir quel était l'état de pureté de leurs échantillons, et quelle est l'influence des impuretés sur leurs mesures, car on sait très bien que dans ce cas on peut avoir des effets qui varient très notablement – nous en avons entendu parler déjà longuement†. En l'absence des auteurs nous n'engagerons pas de discussion. Ces différentes communications avaient trait à de l'uranium non irradié. Si, au contraire, nous considérons le plutonium, dans le fond, il

† Voir Radiation Damage in Solids I, AIEA, Vienne (1962), partie B « Pure Metals ».

* For full text, see section A.2.

n'existe pas de plutonium totalement non irradié puisque le plutonium lui-même est radioactif, donne une activité α susceptible de créer des dommages avant sa mise en pile, et c'est de ce problème que traitait le papier qui est présenté, je crois, ici par M. Elliott.

Short presentation by R. O. Elliott of

OLSEN, C.E., ELLIOTT, R.O. and SANDENAW, T.A.: The self-irradiation of plutonium and its delta alloys*

F. SEBILLEAU: Je voudrais apporter à la discussion quelques résultats que nous avons obtenus à Fontenay-aux-Roses en étudiant le pouvoir thermoélectrique du plutonium à basse température et qui montre une évidence indirecte de l'existence d'une septième forme allotropique du plutonium, ainsi que l'a suggéré le Dr. Elliott. Nous avons fait des cyclages thermiques de plutonium entre la température de l'hélium liquide et la température ordinaire, et nous avons observé que le pouvoir thermoélectrique montre une hystérésis très importante au cours de ce cyclage. D'autre part, un maintien d'une dizaine d'heures à la température de l'hélium liquide a montré que le pouvoir thermoélectrique ne donnait aucune variation. Ceci s'interprète très bien en supposant l'existence de deux phases, l'une au-dessous de 50°K, l'autre au-dessus, avec une transformation très étalée dans les températures et une transformation très paresseuse.

R. O. ELLIOTT: Yes, that is very good. I have only explained the newest evidence from the self-irradiation experiments; in addition, there is a thermal expansion anomaly near 50°C. Anomalies have been reported in the specific heat. The data that is being accumulated indicate that there is indeed a seventh allotropic form, which of course makes this element completely unique. No other element approaches this large number of allotropes.

Mr. A. HERPIN: Nous allons passer maintenant aux effets de l'irradiation sur les matériaux fissiles en pile. Ce sont essentiellement l'effet de gonflement et l'effet de croissance. Ces deux effets proviennent de la nature même du phénomène de fission, phénomène qui donne aux fragments de fission une énorme énergie dissipée, dans le solide sur un parcours relativement court — d'une dizaine de microns —. Ceci conduit par conséquent à une région extrêmement perturbée que l'on a appelée une pointe de fission. Cette pointe de fission est une zone cylindrique où on peut distinguer deux parties: la première partie, la partie centrale, est passée d'un état extrêmement désordonné à un état partiellement réordonné. C'est une zone où il existe de fortes perturbations. La partie externe est simplement perturbée par les dislocations et les fautes d'empilement consécutives à l'énorme variation de volume qu'il y a eu localement au moment de la fission. Cette pointe de fission est responsable du gonflement, de la croissance de l'uranium, croissance qui fait qu'un monocristal d'uranium après irradiation a vu sa direction 0-1-0 s'accroître et la direction 1-0-0 au contraire décroître au point de vue dimensionnel. De très nombreuses expériences ont été faites sur ce gonflement. Malheureusement, nous n'avons pas aujourd'hui de papier

* See section A.2 for full text of these papers.

concernant directement le gonflement en tant que phénomène élémentaire. Je voudrais simplement signaler le grand nombre de théories qui ont été proposées pour expliquer ce phénomène de croissance. Ces théories sont basées, les unes sur une diffusion anisotrope des lacunes après l'irradiation ou au cours de l'irradiation, les autres sur un fluage anisotrope au cours de l'irradiation elle-même, au moment de la formation de la pointe de fission. D'autres théories, plus récentes, proposent l'existence de boucles de dislocation qui seraient différentes suivant les plans cristallographiques devant lesquels elles sont placées. Ce sont les théories qui ont été élaborées en Grande-Bretagne par Westmancott, Martin et Hudson. Malheureusement, je pense que nous ne pouvons pas en discuter puisqu'il n'y a aucun papier correspondant à ceci et c'est infiniment dommage de ne pas parler d'une question qui est aussi intéressante. Ceux-ci sont les effets principaux. Je reviendrai tout à l'heure sur les effets de gonflement. Par contre, il existe d'autres effets qui sont les effets moins spécifiques tels que l'accélération du fluage sous irradiation et le durcissement consécutif à l'irradiation. En effet, l'accélération du fluage sous irradiation est un phénomène assez général dans l'étude des métaux irradiés, ce qu'on peut expliquer assez facilement par le grand nombre de défauts créés et la grande agitation des atomes au moment de l'irradiation. Quant au durcissement, il est simplement dû au fait que les dislocations peuvent se trouver bloquées par les défauts créés. Donc, ceux-ci sont des phénomènes extrêmement importants mais qui ne sont pas particuliers à l'uranium. Malgré tout, il existe un phénomène qui découle de cet effet de durcissement, c'est la fissuration. En effet, les barreaux utilisés dans un réacteur atomique sont soumis non seulement aux effets d'irradiation, mais aussi à des cycles thermiques qui font que la matière tend à se dilater et se contracter au cours du temps. Etant donné que l'uranium est très anisotrope, cette dilatation va faire apparaître des tensions très fortes entre les grains différemment orientés et ces tensions peuvent aboutir à la formation de fissures d'autant plus importantes que les cycles thermiques auront été plus importants. Nous avons maintenant, je crois, la possibilité de mettre en discussion la communication de M. Bellamy sur la fissuration de l'uranium irradié.

Short presentation by R. G. Bellamy of

BELLAMY, R. G., The cracking of irradiated uranium*

A. HERPIN: Le deuxième effet qui est caractéristique de l'irradiation des substances fissiles, c'est le gonflement dû à l'existence de produits de fission. Ces produits de fission qui demeurent dans la matière fissile sont soit des matières solides qui sont relativement solubles dans le métal, soit au contraire des substances très peu solubles qui sont les substances gazeuses telles que, essentiellement, le xénon et le krypton. Les premières, les matières solubles, vont produire une variation de la densité, parfaitement régulière et pratiquement indépendante de la température - environ 3% de variation de densité par pourcentage de taux de combustion. Au contraire, lorsqu'il s'agit de gaz peu solubles ou même pratiquement insolubles,

* For full text, see section A.2

les atomes de ces gaz vont se loger où ils pourront, où ils trouveront de la place, à savoir essentiellement vers des lacunes et vers des dislocations. Malheureusement l'existence de ces lacunes et de ces dislocations va dépendre de l'histoire précédente de l'uranium, des traitements mécaniques ou thermiques qui ont pu donner naissance à ces lacunes et à ces dislocations. Si nous sommes à basse température, ces lacunes sont peu mobiles, par conséquent on peut supposer que les atomes de ce gaz vont rester dispersés dans la matrice du métal. Si, au contraire, la température devient plus grande, la diffusion des lacunes emportant leurs atomes de gaz rare provoquera leur rassemblement et conduira à la formation de bulles, qui vont provoquer également une diminution de la densité de l'échantillon d'uranium. Par conséquent, si l'on veut bien comprendre la formation de ces bulles, il est bon a priori de connaître le mécanisme de la diffusion. On peut faire l'expérience sur de l'uranium non irradié en essayant de dissoudre un gaz rare dans un métal non irradié et en mesurant la diffusion de ce gaz. Le travail que Mlle Lévy va présenter concerne ce sujet.

Short presentation by Miss V. Lévy of

BREBEC, M. G., LÉVY, V., LETEURTRE, J., QUERE, Y. et ADDA, Y. : Etude de la diffusion et de la précipitation des gaz rares dans les métaux*

Short presentation by B. A. Loomis of

LOOMIS, B. A. : Swelling of uranium*

J. LEHMANN: Je voudrais faire une comparaison entre les résultats du Dr. Loomis sur le swelling obtenu par recuit de l'uranium irradié et les résultats que nous avons obtenus par recuit de l'alliage uranium-molybdène à 1% en poids après une irradiation jusqu'à 10 000 MWj/t dans un réacteur EL3. Dans le cas de l'alliage uranium-molybdène, la mesure de densité après irradiation montre un accroissement de volume de 3%, ce qui correspond au volume des produits de fission solides pour un taux de combustion de 10 000 MWj/t. Donc, il n'y a pas de swelling. Des traitements thermiques à 450, 500 et 550° n'ont apporté qu'une variation de volume négligeable, ce qui est en accord avec les résultats du Dr. Loomis. Des traitements thermiques dans le haut de la phase alpha au-dessus de 550° apportent dans les deux cas un accroissement de volume. Toutefois, cet accroissement de volume est beaucoup plus important dans le cas de l'uranium que dans le cas de l'alliage uranium-molybdène. Il est de 8 à 18% après un burn-up de 0,3% sur la courbe du Dr. Loomis et il est seulement de 2½% après un burn-up de 1% sur l'alliage uranium-molybdène. Le fait d'obtenir un accroissement de volume par chauffage du métal irradié est en désaccord avec ce qui a été observé par certains auteurs anglais, et en particulier par Pugh. Ces auteurs pensent que la croissance des bulles est contrôlée uniquement par la tension superficielle, celle-ci étant indé-

* For full text, see section A.2

pendante de la température dans la zone 450-650°. Il ne s'ensuit donc aucun swelling au cours du recuit. Nos résultats et ceux du Dr. Loomis montrent au contraire une dépendance du swelling vis-à-vis de la température, ce qui semble correspondre à une corrélation entre le swelling et le fluage. Cette corrélation a été observée également par Bentley, de Atomics International, dans un certain nombre de matériaux. On peut expliquer les différences très importantes dans l'accroissement de volume des deux matériaux à 600° par les différences de leurs caractéristiques mécaniques. L'alliage uranium-molybdène a une résistance au fluage hors pile de 5 à 10 fois celle de l'uranium à 600° et une limite élastique environ trois fois supérieure. De plus, dans le cas du travail du Dr. Loomis il y a une recristallisation de l'uranium en grains très fins à 600°, ce qui abaisserait encore la résistance au fluage. A ce propos, je voudrais demander au Dr. Loomis à quoi est due cette recristallisation. Est-ce que c'est la conséquence de l'écroutissage apporté par l'irradiation? La comparaison des courbes de swelling obtenues par traitement dans les domaines bêta et gamma montre un bon accord entre l'uranium et l'alliage uranium-molybdène et le brusque accroissement de volume en phase gamma peut s'expliquer par le très fort accroissement du coefficient de diffusion du krypton dans l'uranium en phase gamma, tel qu'il a été déterminé dans le papier de Mlle Lévy et d'Adda.

B. A. LOOMIS: In addition to our experiments on uranium we have also studied the swelling of uranium alloys, including those containing up to 10 wt. % molybdenum. The general effect we observed with some molybdenum alloys that were included in these experiments was that for the most part the metallic elements added to the high-purity uranium caused the specimens to swell much more. Carbon, on the other hand, seemed to lower the swelling of uranium. I'm speaking of carbon content up to 1100 ppm. In answer to your question about the uranium recrystallization, let me say that the irradiated specimens appeared highly deformed and when heated to a recrystallization temperature large bubbles were formed on the grain boundaries. We see a large number of small pores and we're not sure of the interpretation. There are about ten pores per square centimetre. They have a diameter of about 0.02 - 0.06 μm . After recrystallization, when large bubbles were formed at grain boundaries, we did not see small pores within the recrystallized grains. This may indicate that the krypton and the xenon are diffusing to the grain boundaries.

A. A. SHOUDY: I would like to ask Dr. Loomis how he relates the out-of-pile swelling with in-pile swelling. Or doesn't he intend to do this?

B. A. LOOMIS: I would be very sceptical about extrapolating out-of-pile to in-pile behaviour. I think the Hanford Laboratories people intend to do this but I would consider it very fortuitous if there were some correlation.

A. A. SHOUDY: I would also like to ask whether you measured fission-gas release during heating.

B. A. LOOMIS: Yes, we did. The measurements were all negative. We did not observe any krypton or xenon release from the specimens. However this may have been due to the insensitivity of our apparatus. I would estimate that only a very small quantity of gas would be released.

E. D. HYAM: I was interested to see in Dr. Loomis's paper that he found small features rather like small bubbles in unirradiated uranium which had been cathodically vacuum-etched. We too have found this and they have all

the appearance of gas bubbles about 200-500 Å in diameter and we have also observed similar effects in unirradiated uranium. We do not know what causes this effect nor are we sure whether there is any way of modifying this effect by changing the etching technique. But it does seem as if cathodic vacuum etching might not be the best way of looking at very small gas bubbles of this order of size - 500 Å and below. We have found that simply fracturing irradiated uranium is in many respects a satisfactory alternative because the cleavage surfaces reveal the bubble distributions within the grains and the inter-granular surfaces reveal the distribution on grain boundaries.

The second point I wanted to make is that it is likely that there will be some contribution to the total swelling in these specimens due to stress-induced growth of gas bubbles, which is diffused into the grain boundaries. This phenomenon of stress-induced bubble growth was demonstrated in the paper we presented yesterday *, in the case of helium in irradiated beryllium. In the case of irradiated uranium the operative stresses would be generated by thermal cycling. The process would operate at temperatures sufficiently high in the alpha range to produce appreciable diffusion of vacancies at the top part of the cycle. Since cracks have not developed to any great extent in Dr. Loomis's specimens one would not really expect that the contribution to swelling by this effect would be very great, but one does wonder whether smaller swellings might be obtained if the annealing treatments were so arranged that each specimen has only one anneal. If I may take this business of stress-induced growth just one step further, the slide ** shows an example of it in a specimen of uranium - 0.5 at. % chromium which was irradiated to 2000 MWd/t at a temperature of 530°C. During the irradiation it had rather severe thermal cycling - about 70 cycles from the nominal irradiation temperature of 530°C down to about 150°C. At any rate, this specimen and a number of others like it developed pronounced grain boundary cracking and change of void along the grain boundaries. This particular specimen had identity decrease of about 4 - 3.5%. I'm afraid the slide isn't very clear, but you're looking now at a room-temperature impact fracture of this specimen. It is broken along a grain boundary and you're looking down on to the grain boundary surface. That surface is covered with small holes. There is a complete size distribution from spherical holes of about 300 or 400 Å in diameter up to sizes about 2 μm in diameter. The larger voids, over about perhaps 0.2 μm in size, are crystallographic in shape. They are polyhedra and are all oriented in the same way. The structure is very similar, indeed, to the other structures that we showed yesterday in helium bubbles and growth voids in beryllium.

One sees immediately the application to the paper by Bellamy +, because these voids grow under the inter-granular stresses. They spread sideways and form fissures, extending over the grain surfaces, which can be quite narrow. We consider that this stress-induced growth is another mode of crack formation which can operate at the top end of a thermal cycle.

B.A. LOOMIS: We observed no cracking in specimens annealed below

* HYAM, E. D. and SUMNER, G., "Irradiation damage to beryllium", Radiation Damage in Solids I, IAEA, Vienna (1962) 323-332

** Not included in the proceedings.

+ BELLAMY, R. G., "The cracking of irradiated uranium", these Proceedings, section A. 2.

650°C. However in the specimen that we annealed at 650°C, which should have been in the alpha phase, we did observe considerable cracking and we attributed this to the fact that the alpha rate of transformation was lowered because of the fission products in the material. In the specimen that was annealed at 650°C, the structure appeared very similar to specimens annealed at higher temperatures in the beta phase. Its density decreased in a similar manner. Concerning the small pores that you see in the irradiated material, we have tried several different techniques – chemical etching, polishing, and then we also tried cathodic etching and various combinations of these. We always found approximately the same number of 200 - 600- μ m pores. I am not sure what the interpretation of them is. They seem to be very real.

E.D. HYAM: May I add one more relevant comment on this point? We always notice that these tiny pores have got rather long shadow tails on them. One wonders whether one isn't observing tunneling down dislocations. This may account for the reason why one always gets these features, because one would attack such a structural feature both by cathodic vacuum etching and by chemical method.

B.A. LOOMIS: We do not observe these long tails that you speak of. However, I do see quite a bit of structure in addition to the small pores. The structure is very much smaller than the 200 - 600- μ m pores and the smaller structure seems to be joined, that is, linking the 200 - 600- μ m pores. I agree with you that fracturing specimens and looking at them without doing any chemical etching or polishing was probably the best procedure for studying these samples.

A. HERPIN: Pour l'instant, nous avons envisagé très rapidement – trop rapidement – les différents effets qui pouvaient se produire dans les matériaux fissiles. Nous avons en somme détaillé les différents phénomènes en considérant tout d'abord le gonflement puis la fissuration, et puis maintenant ce que nous voudrions savoir c'est ce qui se passe dans un combustible réellement mis dans un réacteur, réellement utilisé, et savoir comment il va se comporter. Il ne s'agira jamais d'uranium pur comme nous en avons entendu parler jusqu'à présent, mais d'alliage d'uranium, d'uranium plus ou moins stabilisé, je crois en l'occurrence avec de l'aluminium, du fer ou du chrome en petite quantité qui forment en quelque sorte des zones de pré-précipitation à l'intérieur de l'uranium, qui permettent de localiser un certain nombre de défauts et d'en abaisser la mobilité qui les rend extrêmement néfastes à haute température. Dans cette perspective, nous avons le papier de M. Gittus.

Short presentation by J. Gittus of

GITTUS, J.H., ELDRED, V.W., STUTTARD, A., SLATTERY, G. and CHATTERLEY, F.: Dimensional stability of uranium under irradiation *

Short presentation by A.E. Shoudy of

SHOUDY, A.A., McHUGH, W.E. and SILLIMAN, M.A.: The effect of irradiation temperature and fission rate on the radiation stability of uranium - 10 wt. % molybdenum alloy *

* For full text, see section A.2