



HAL
open science

Développement de procédés de fabrication de combustibles MOX par voie liquide

F. La Lumia, L. Ramond, G. Bernard-Granger, C. Pagnoux

► **To cite this version:**

F. La Lumia, L. Ramond, G. Bernard-Granger, C. Pagnoux. Développement de procédés de fabrication de combustibles MOX par voie liquide. (GFC) 2018 Journées Annuelles du Groupe Français de la Céramique, Mar 2018, Pessac, France. cea-02339111

HAL Id: cea-02339111

<https://cea.hal.science/cea-02339111v1>

Submitted on 13 Dec 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Journées Annuelles du Groupe Français de la Céramique

23/03/18

Développement de procédés de
fabrication de combustible MOX par
voie liquide

Florian LA LUMIA (thèse 2^{ème} année)

Thèse dirigée par : C. PAGNOUX (IRCER Limoges) et
G. BERNARD-GRANGER (CEA Marcoule)
Encadrante : L. RAMOND (CEA Marcoule)

*CEA Marcoule / Direction de l'Energie Nucléaire,
Département de recherche sur les procédés pour la mine et le recyclage du combustible,
Service de fabrication de matériaux actinides, Laboratoire de fabrication des combustibles*

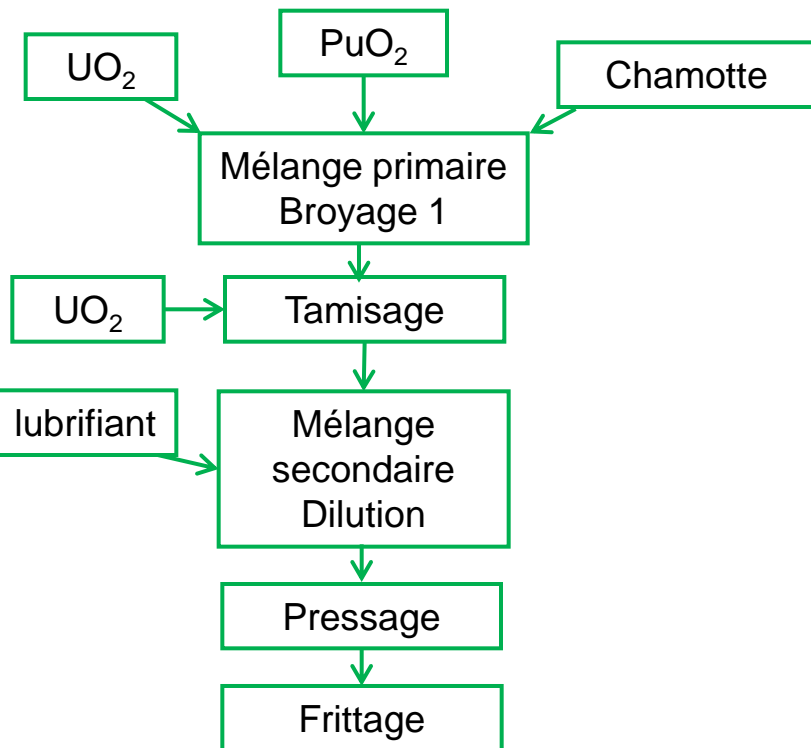


DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

cea den

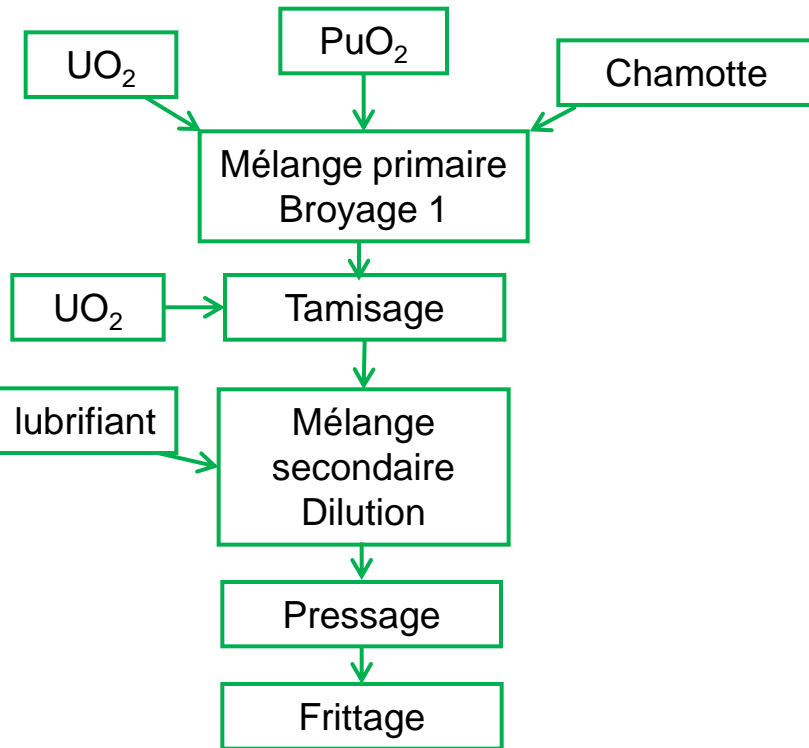


Université
de Limoges

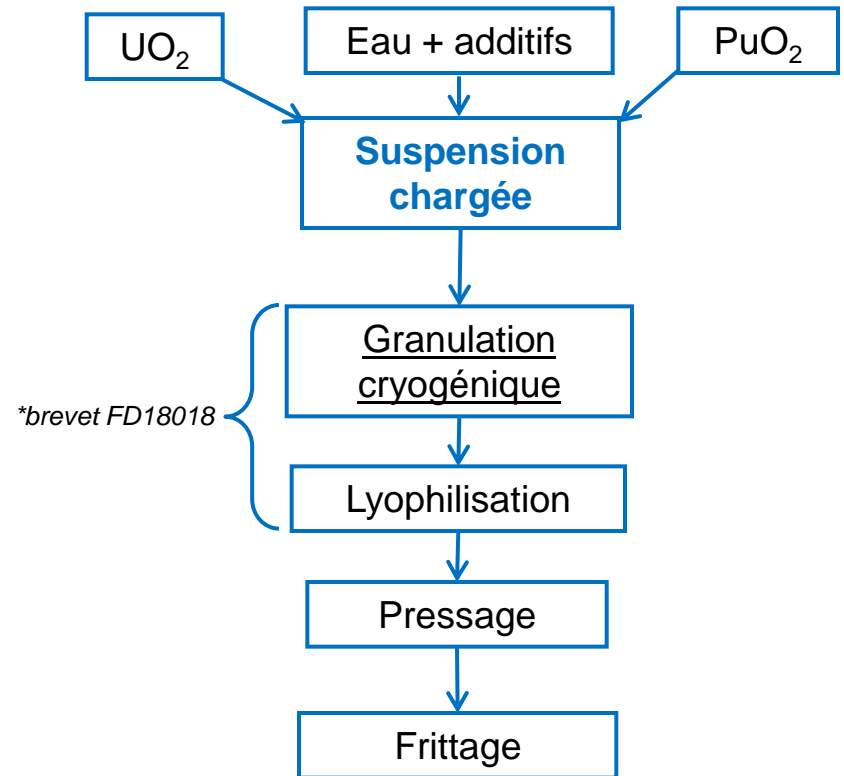
Procédé MOX « **voie sèche** » actuel

- Métallurgie des poudres en **voie sèche**
- Nombreuses étapes potentiellement disséminantes (**empoussièremement B_àG**)
- Limites du procédé : **écoulement des poudres, robustesse, inhomogénéités Pu, défauts**

Enjeux de la thèse

Procédé MOX « **voie sèche** » actuel

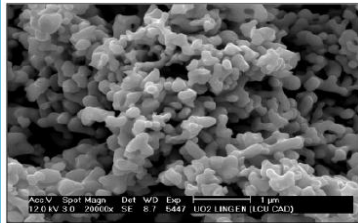
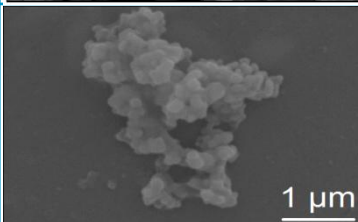

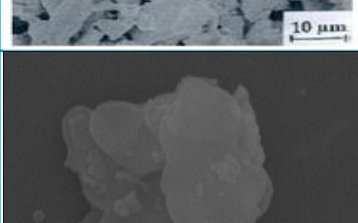
- Métallurgie des poudres en **voie sèche**
- Nombreuses étapes potentiellement disséminantes (**empoussièremement BÀG**)
- Limites du procédé : **écoulement des poudres, robustesse, inhomogénéités Pu, défauts**

Procédé « **voie liquide** » à l'étude

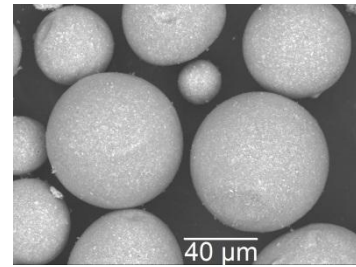
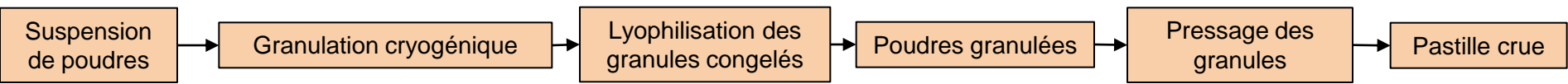
- Minimisation de la production de particules fines, distribution U/Pu plus homogène, - rebuts
- **Rupture technologique** : procédés en **voie liquide**
- **Point clé : préparation des suspensions chargées**

Matières premières - Simulants

- Recours à des **poudres simulantes** durant la 1^{ère} année de thèse (avant passage en actif)
- Principaux **critères de choix** des simulants : **morphologie et taille** des particules, **Point de Charge Nulle**

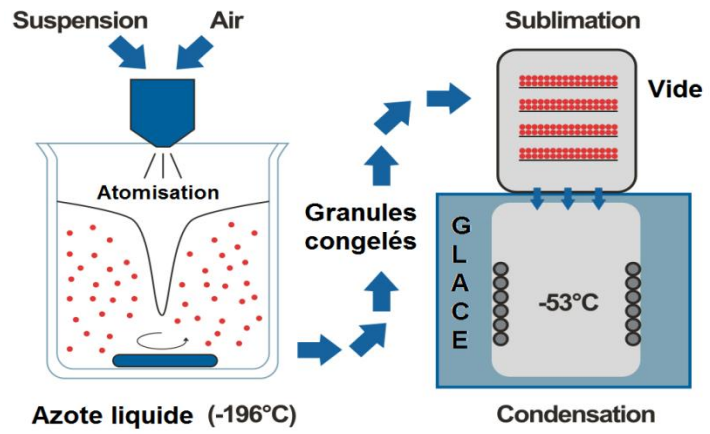
	Poudre	Taille des particules (µm)	Morphologie des particules	Point de charge nulle (PCN) littérature	Micrographie MEB
Poudre active ⇕ Poudre simulante sélectionnée	UO₂ (voie sèche)	0,8 - 8	Agrégats de sphères	5,5	
	TiO₂	0,6		5 - 6	
Poudre active ⇕ Poudre simulante sélectionnée	PuO₂	1 - 10	Plaquettes	9	
	Y₂O₃	1 - 2		9	

Voie liquide : granulation cryogénique



Formulation :

- Taux de solide
- Nature et concentration de dispersant et liant



Choix des conditions d'atomisation :

- Débit de suspension
- Débit de gaz d'atomisation

Pressage des pastilles :

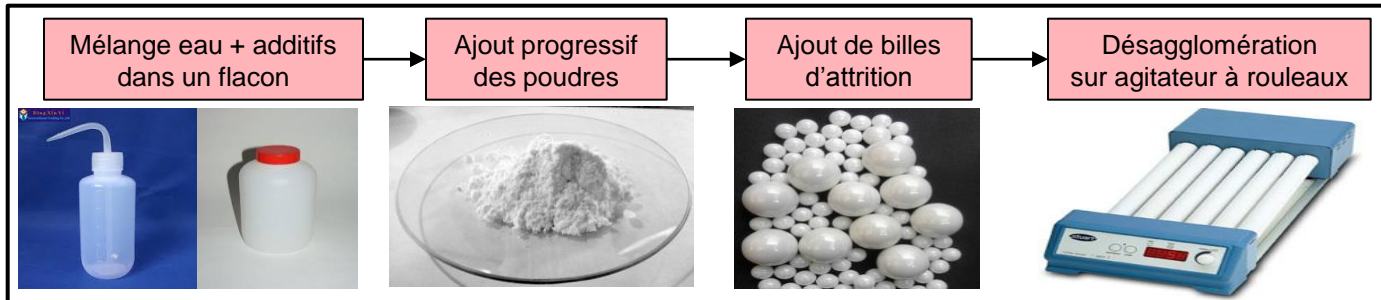
- Conditions mécaniques de pressage
- Lubrification

Problématique et objectifs

Objectif : préparer des suspensions **fortement chargées**, **dispersées** et **fluides** avant de les granuler.

Problématique : co-dispersion de deux poudres différentes TiO_2 et Y_2O_3 (système mixte)

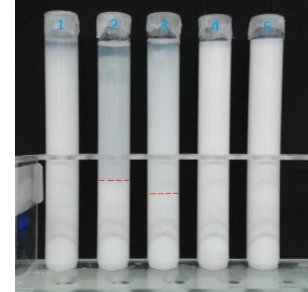
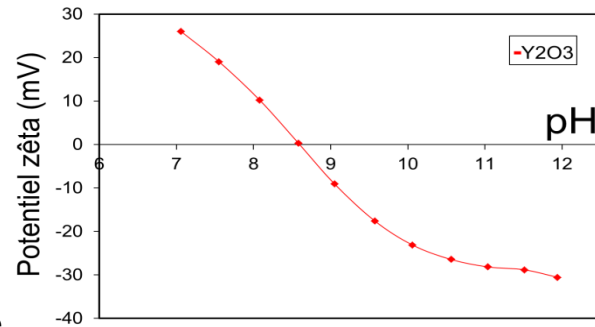
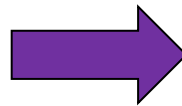
Préparation des suspensions :



Étude de la dispersion



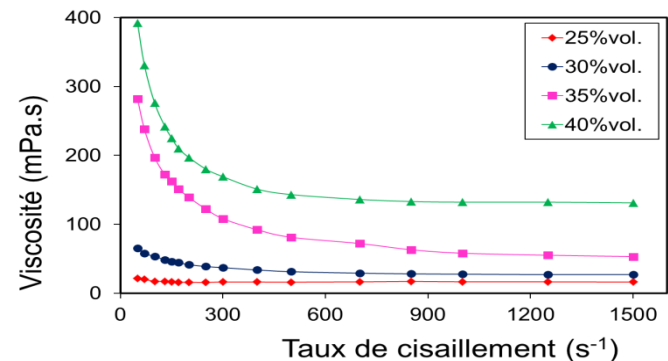
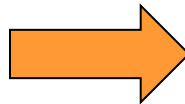
Charges de surface



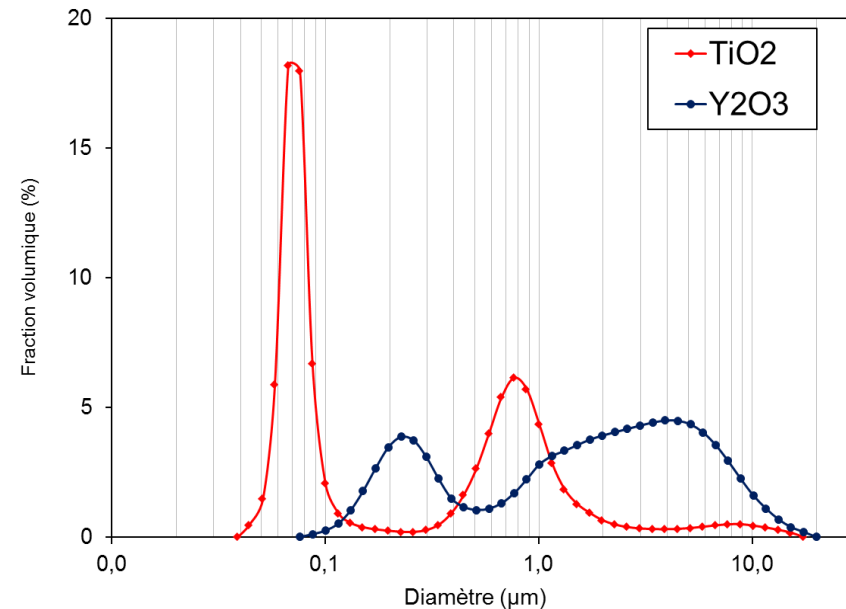
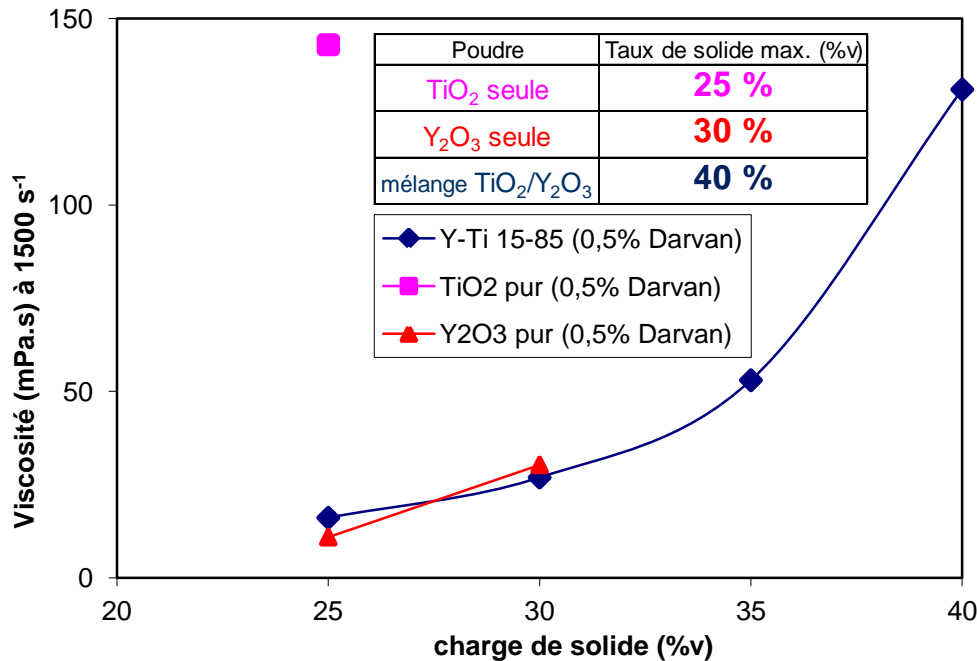
Étude de la fluidité



Propriété rhéologiques

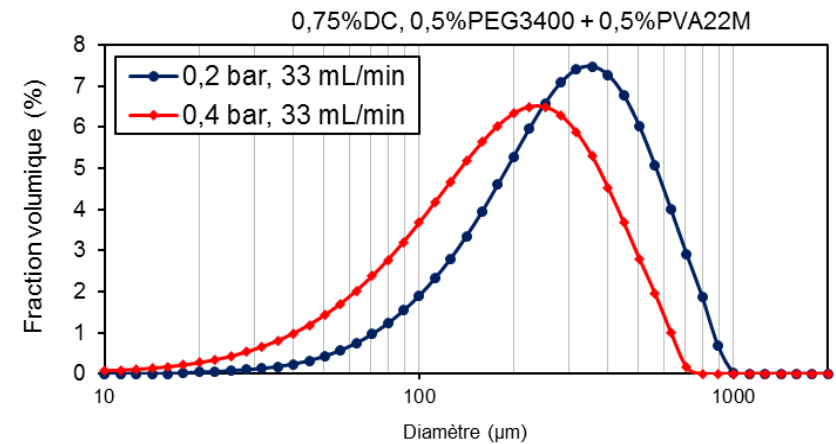
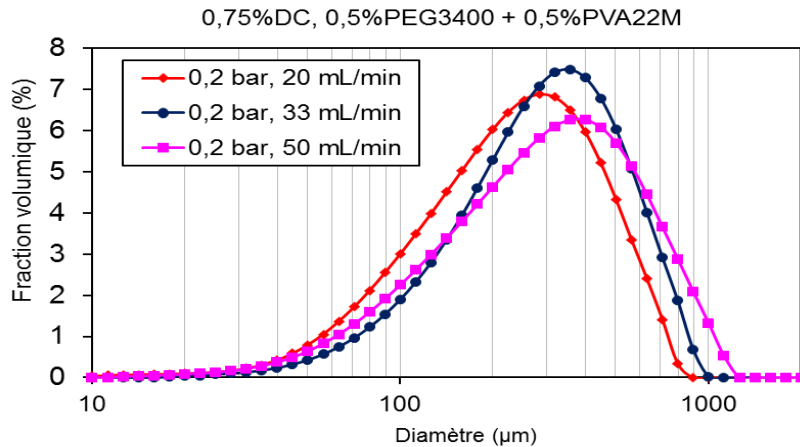


Le mélange de poudres permet de monter à des taux de solides supérieurs à ceux des suspensions de poudres pures :



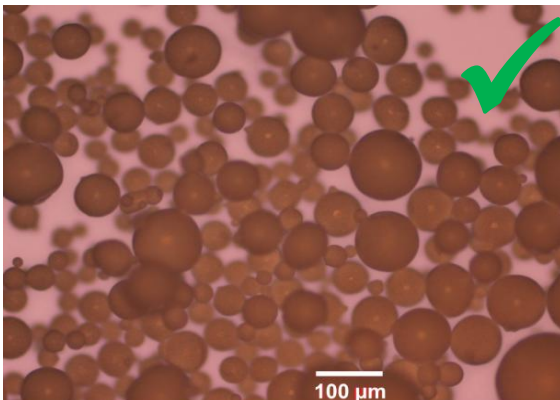
Les viscosités sont bien plus faibles que celles des suspensions pures aux mêmes taux de solides : effet de synergie des particules $\text{TiO}_2 + \text{Y}_2\text{O}_3$ attribué aux distributions granulométriques complémentaires

Taille et morphologie des granules

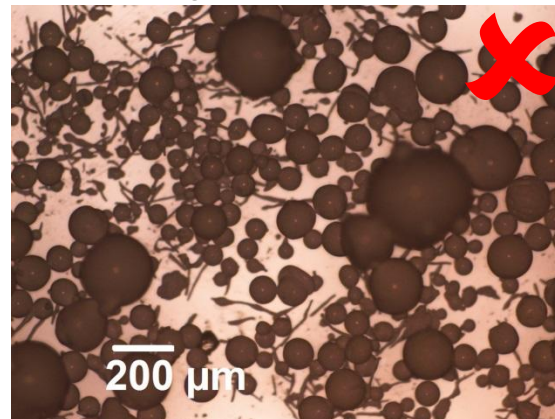


La taille moyenne des granules augmente quand : le débit de suspension augmente et/ou la pression d'air comprimé diminue

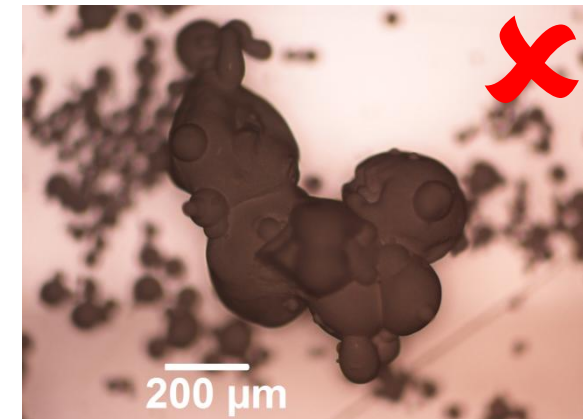
Cependant, les suspensions trop visqueuses et/ou trop chargées, granulées avec des ratios de débits liquide/air trop élevés ou trop faibles donnent des granules difformes :



Granules sans difformités

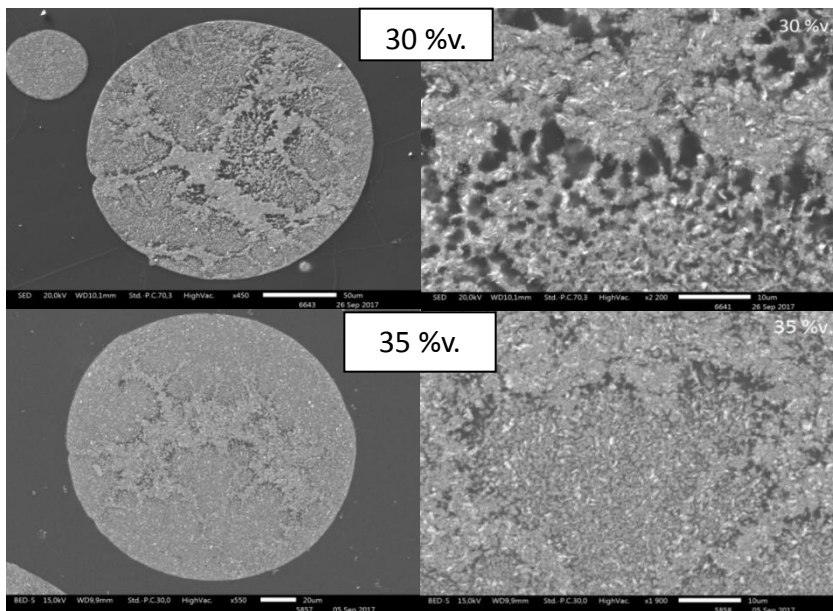
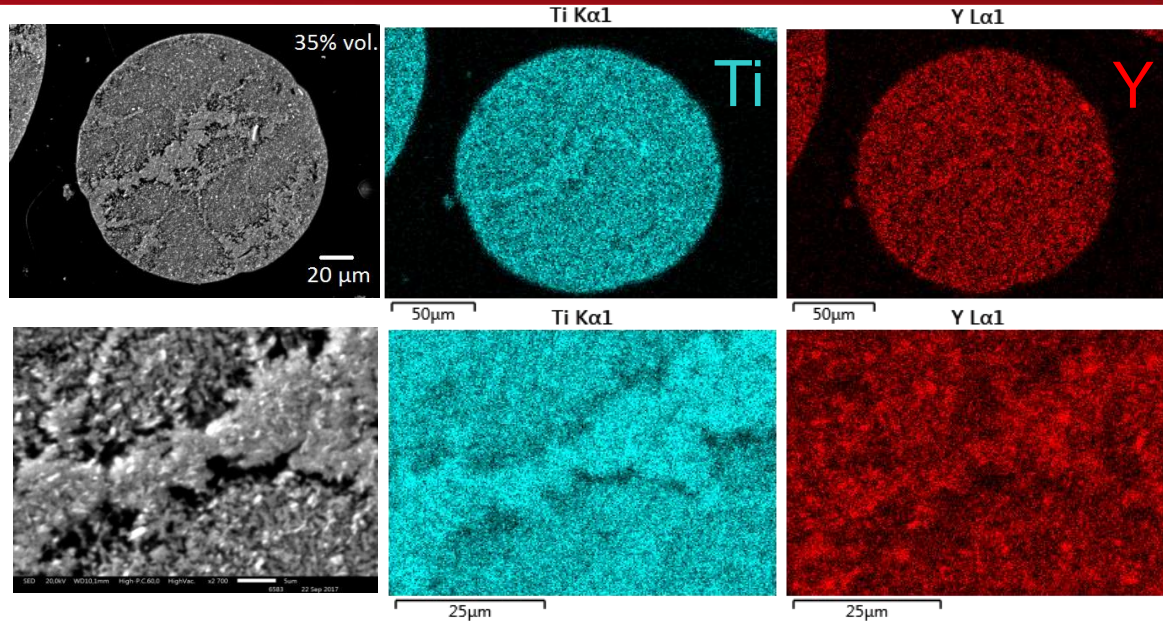


Granules en forme de fins bâtonnets

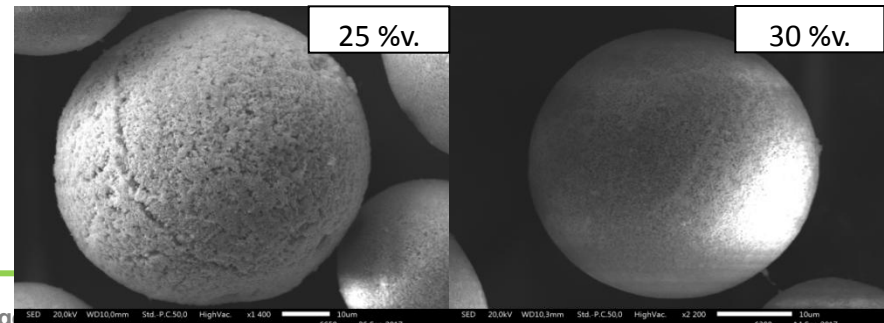


Amalgames de granules fusionnés

MEB-EDS des granules :
répartition très homogène des
éléments **Titane** et **Yttrium**

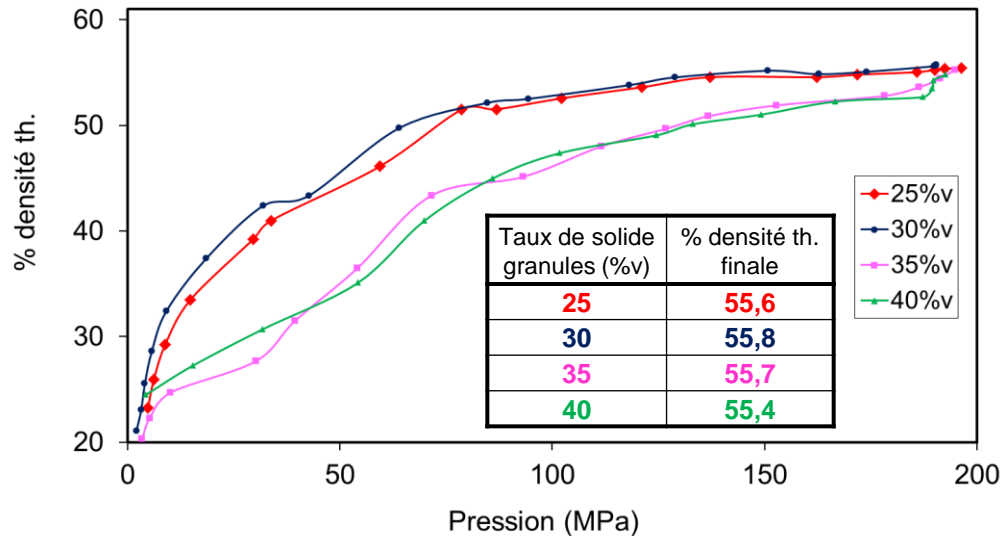


- Porosimétrie Hg : pores de taille moyenne 200 nm
- La présence de liant fait diminuer la taille des pores
- La porosité (interne et de surface) augmente quand le taux de solide des suspensions diminue



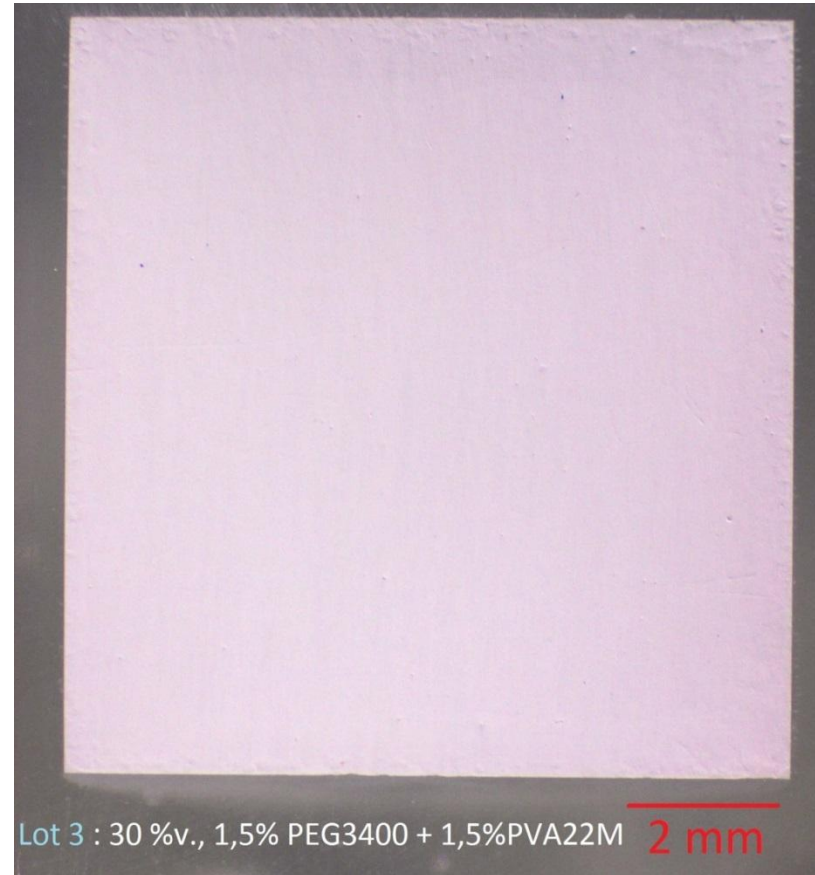
Pastille crue pressée et enrobé poli :

Pressage granules 190 MPa



Densité finale identique selon le taux de solide des granules (environ 55 % d. th.)

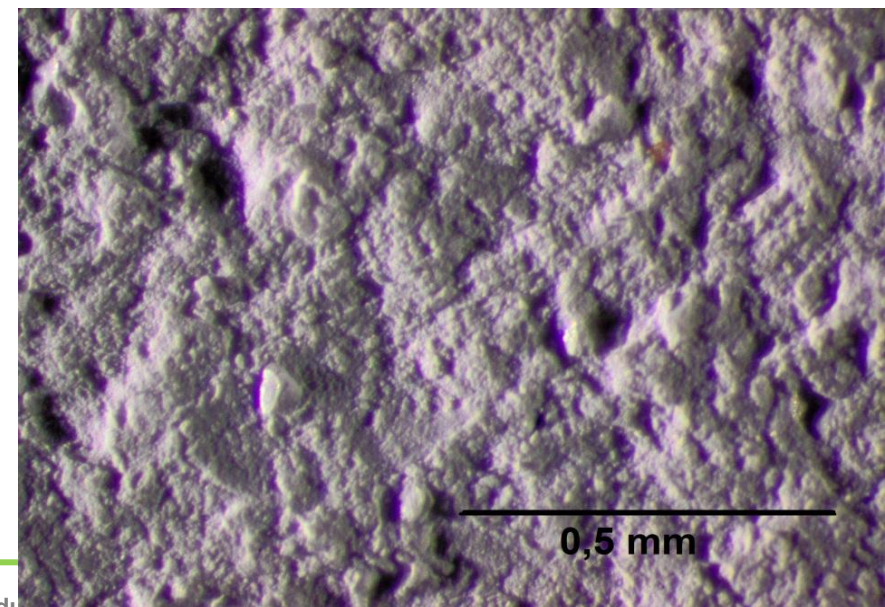
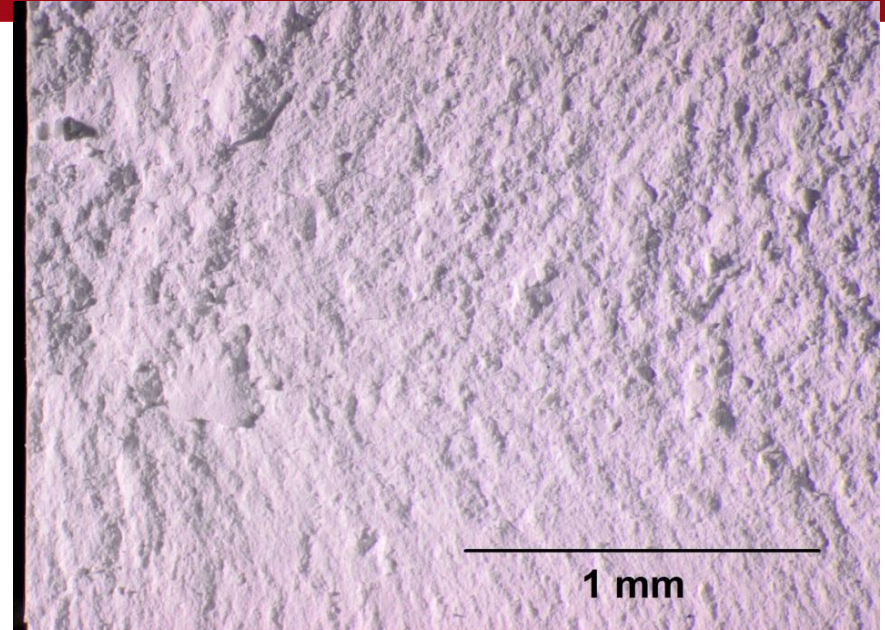
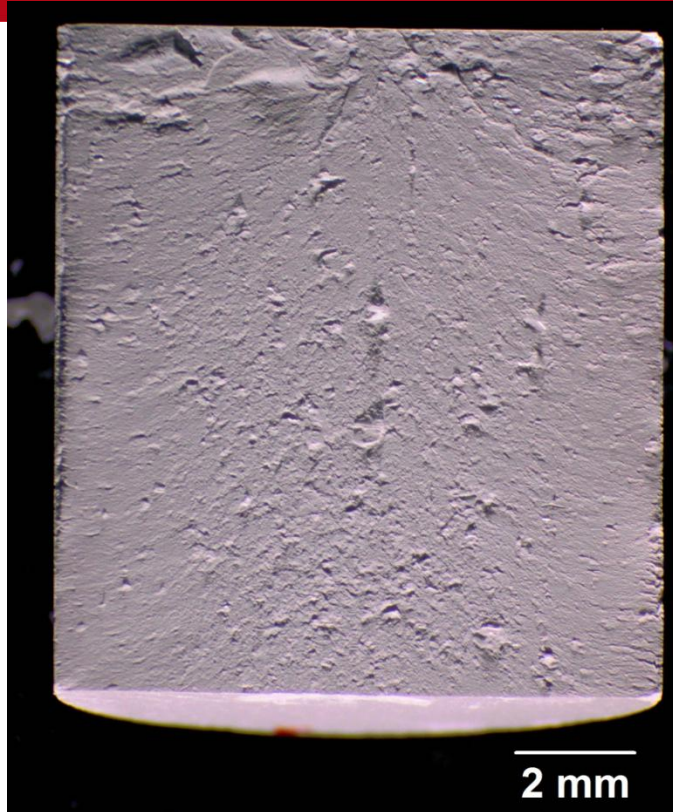
Absence de défauts visuels externes (écaillés, éclats)



Structure interne relativement compacte, ne contenant ni fissure, ni vides de grande taille



Pastilles crues – Surfaces de rupture



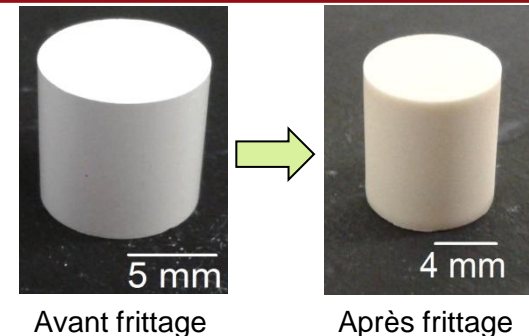
Surfaces de rupture des pastilles :
reliques de granules visibles en faibles quantités

Dans l'ensemble, bon écrasement des granules
lors du pressage et faible persistance dans les
pastilles crues

- Frittages réalisés sur les pastilles inactives $TiO_2-Y_2O_3$:

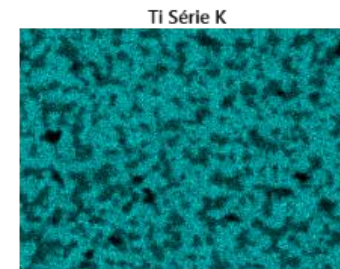
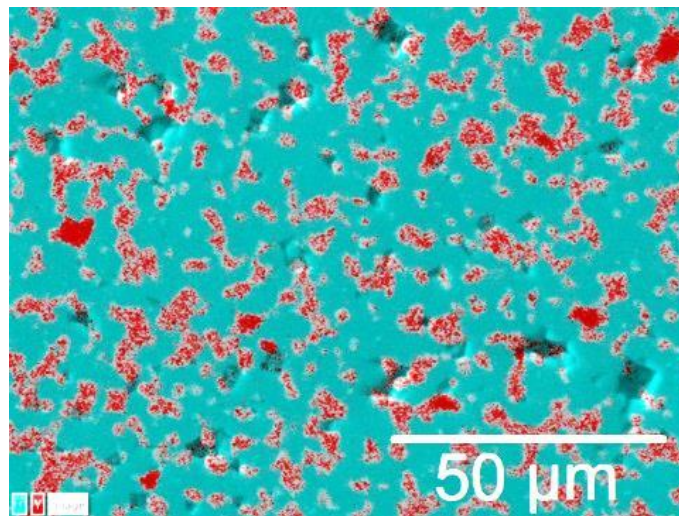
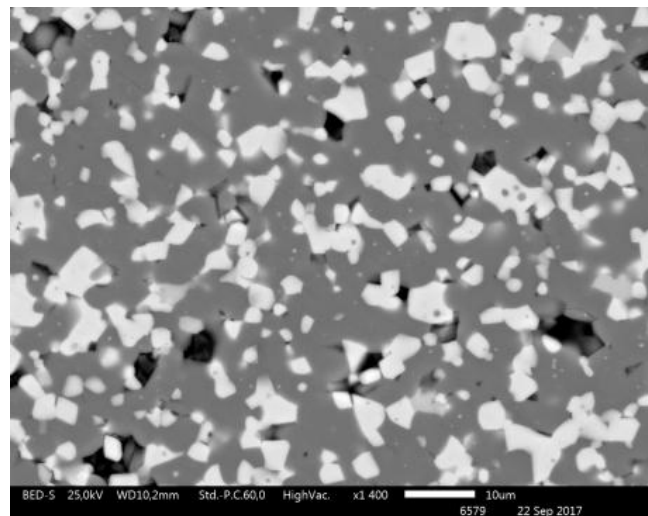
⇒ Les pastilles atteignent toutes des densités similaires, d'environ 94 % d. th. (cycle de frittage : 1h30 à 1500°C sous air, non optimisé)

⇒ Conservation post frittage de la répartition très homogène des éléments **Yttrium** et **Titane** observée dans les granules :

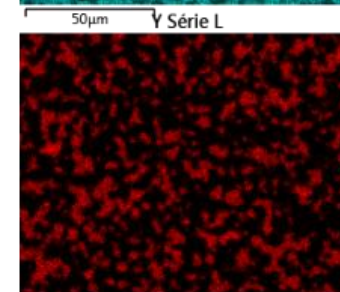


Avant frittage

Après frittage



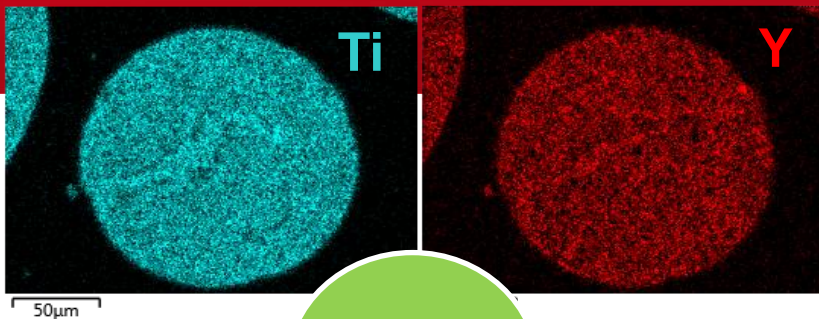
Ti



Y

Echantillon $TiO_2-Y_2O_3$ 15%at. Y fritté 1500°C – 1h30

Conclusion



Répartition
Ti - Y
homogène

Taille
centrée
200 µm

Absence
de fines

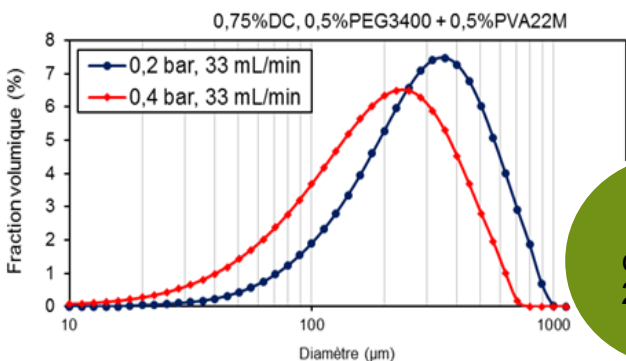
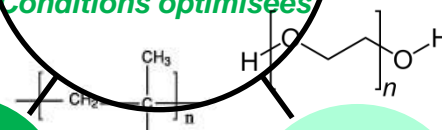
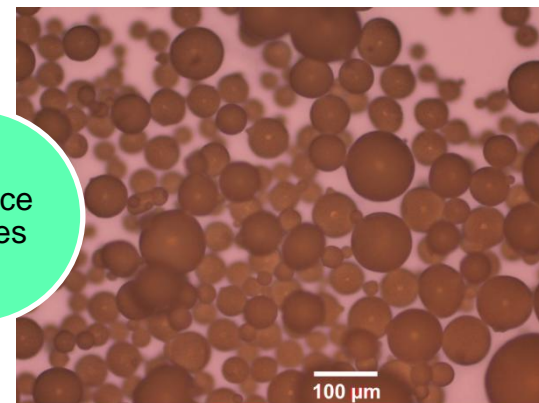
**Granulation
cryogénique**

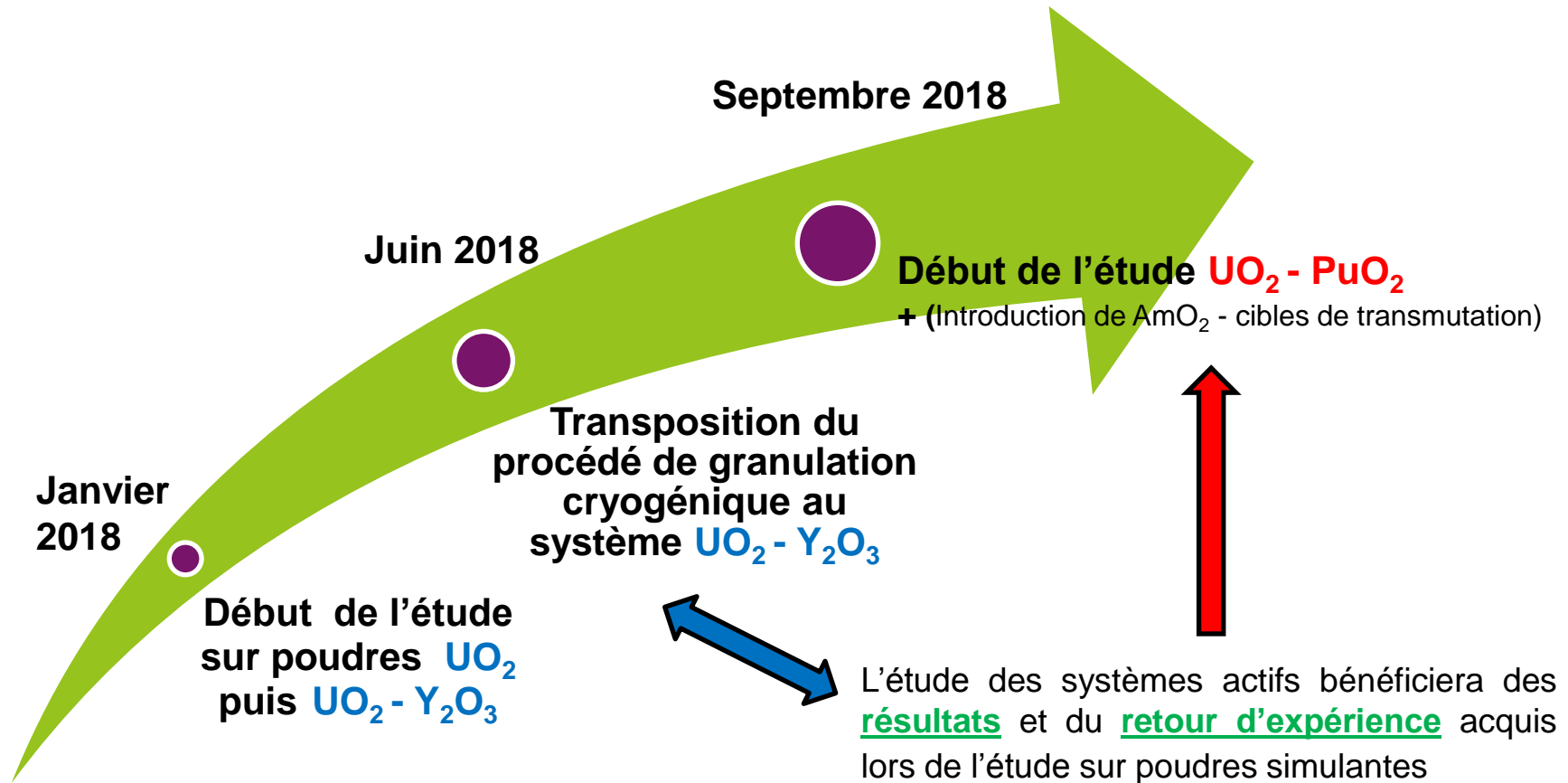
Conditions optimisées

Absence
de défauts
pastilles

Excellente
coulabilité

Ratio Hausner
< 1,12





- Etudes de radiolyse sur les additifs organiques (PEG, PVA, Darvan C) utilisés en inactif (stage)

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE

cea den

Merci pour votre attention !

