



**HAL**  
open science

# Les matériaux absorbants neutroniques, propriétés et comportement en réacteur

D. Gosset

► **To cite this version:**

D. Gosset. Les matériaux absorbants neutroniques, propriétés et comportement en réacteur. Contrôle de la réactivité et absorbants neutroniques, SFEN; UICF, Nov 2016, Paris, France. cea-02435107

**HAL Id: cea-02435107**

**<https://cea.hal.science/cea-02435107>**

Submitted on 10 Jan 2020

**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.



# LES MATÉRIAUX ABSORBANTS NEUTRONIQUES, PROPRIÉTÉS ET COMPORTEMENT EN RÉACTEUR

Dominique GOSSET (*CEA, Paris-Saclay Univ.*)

23 novembre 2016

## Sommaire

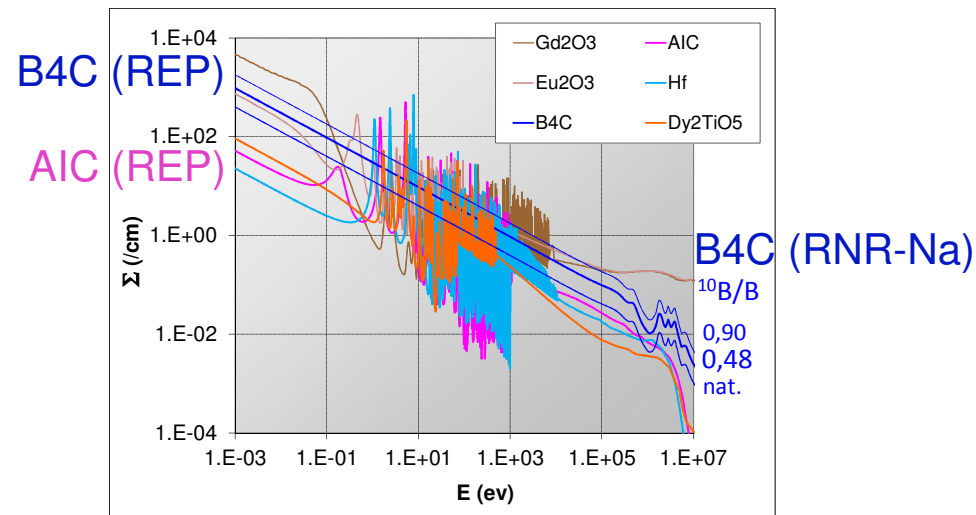
- ❑ rappel des contraintes conduisant aux choix matériaux
- ❑ cas des réacteurs à eau
  - l'alliage AIC
  - le carbure de bore
- ❑ cas des réacteurs à neutrons rapides : le carbure de bore
- ❑ autres matériaux
- ❑ conclusion

## LE CHOIX D'UN MATÉRIAU ABSORBANT

- contraintes neutroniques : exigences pour le pilotage et le contrôle des réacteurs  
(spectre thermique ou rapide, absorbant ou poison, contrôle ou arrêt...)
- comportement sous irradiation  
(gonflement, produits de réaction, évolution de l'efficacité...)
- compatibilité avec les composants du cœur (structure, caloporteur)  
(solubilité, eutectiques, réactions solide-solide...)
- sûreté (température de fusion, production de gaz...)
- disponibilité, coût  
(filière industrielle, militaire, recherche...)
- aval du cycle, filière déchets

## LE CHOIX D'UN MATÉRIAU ABSORBANT

- contraintes neutroniques : exigences pour le pilotage et le contrôle des réacteurs

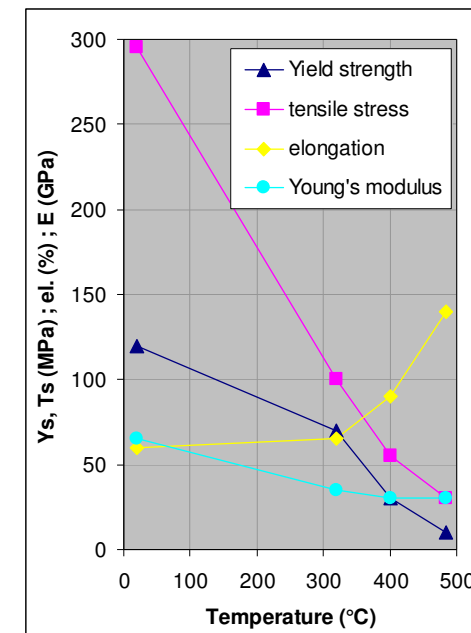


*section efficace d'absorption neutronique  
macroscopique pour quelques matériaux courants*

- absorption neutronique signifie **réactions nucléaires** :
  - évolutions isotopiques et de composition, efficacité
  - limites de solubilité, changements de phase...

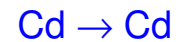
## L'ALLIAGE AIC (Ag-In-Cd) DANS LES REP

- ❑ Alliage ternaire 80 %m Ag, 15 %m In, 5 %m Cd
  - ✓ « inventé » en 1956 pour suppléer au manque de hafnium (réacteurs militaires)
  - ✓ Ag, Cd : absorption neutronique ; In : **résistance corrosion**
  - ✓ proportions : compromis efficacité et structure métallurgique (monophasé)
  
- ❑ Propriétés thermo-physiques
  - solution solide, structure cfc
  - densité 10,17 g/cm<sup>3</sup> (id. UO<sub>2</sub>)
  - conductivité thermique :
    - 20°C : 55 W/m.K
    - 400°C : 82 W/m.K
  - T<sub>f</sub> 800°C : le composant le plus « fusible » du cœur
    - ➔ **Fluage, tassement**
      - ✓ recuit des défauts
      - ✓ forte mobilité atomique (diffusion)



## L'ALLIAGE AIC (Ag-In-Cd)

☐ réactions d'absorption :



Alliage (% at.)	Ag	Cd	In	Sn
Non irradié	80,8	4,9	14,3	--
Irradié (8 cycles REP)	68,1	17,8	7	7,1

Sn > 1,7% at. : précipitation d'une nouvelle phase

➤ Moins compacte

⇒ gonflement

➤ Conductivité thermique abaissée

⇒ échauffement

➤  $T_f < T_f(\text{AIC})$

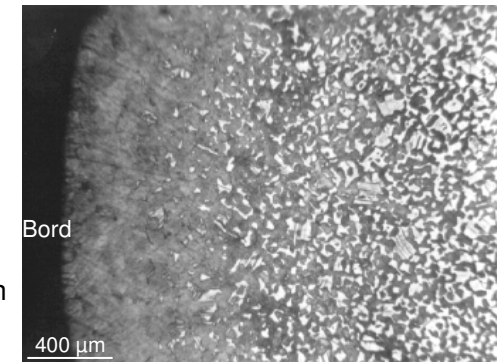
➤ Gonflement, tassement : fortes contraintes sur la gaine (fissuration)

➤ durée de vie réduite

Microstructure de l'AIC irradié (4 cycles REP) :

• plages claires : phase cubique initiale

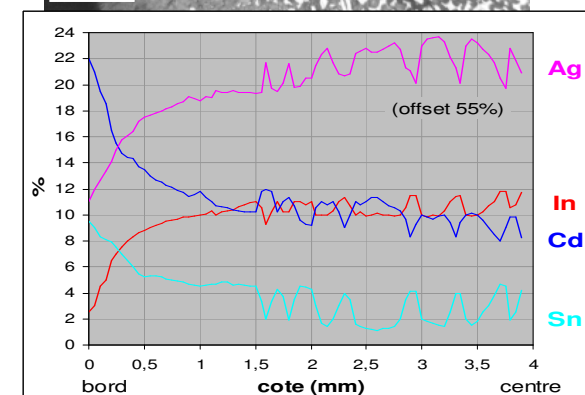
• plages sombres : nouvelle phase (hexagonale) riche en étain



Profils microsonde :

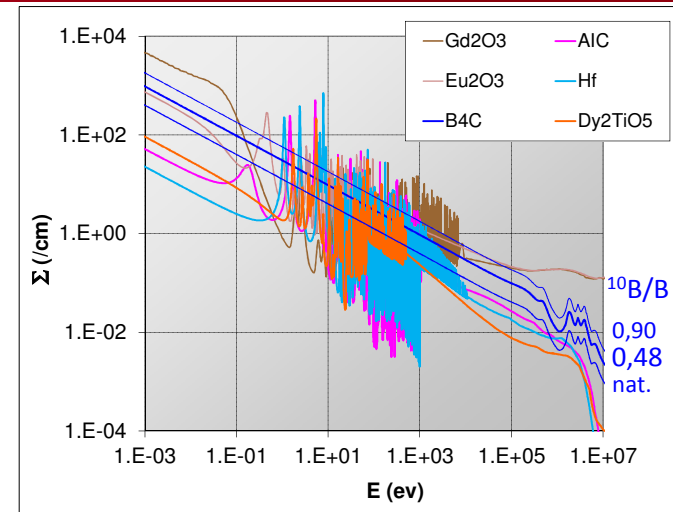
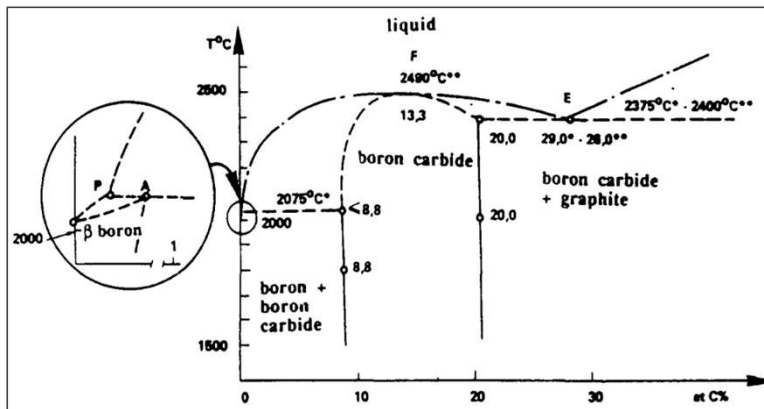
• courbure : profil de captures

• sauts : biphasé

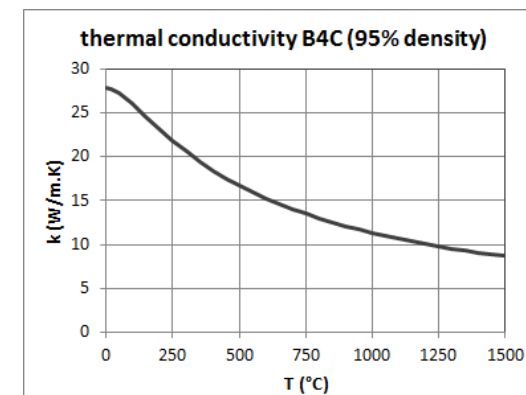


## LE CARBURE DE BORE "B<sub>4</sub>C"

- ❑ très utilisé : blindages, outils, abrasifs...
- ❑ composition habituelle proche de B<sub>4</sub>C
- ❑ appro : Chine, USA...
- ❑ bore : environ 20 %at. <sup>10</sup>B dans le bore naturel, peut être enrichi (ou appauvri) : 0,5 – 99,5 %at.
- ❑ léger (2,5 g/cm<sup>3</sup>), céramique fragile ( $K_{1C} \sim 5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ )
- ❑ haute température de fusion
- ❑ semiconducteur : conductivité thermique  $\sim 1/T$



*macroscopic neutron absorption cross section*



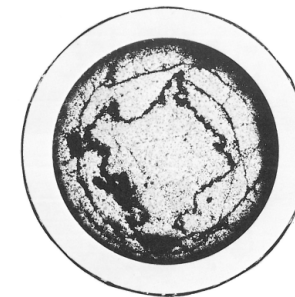


## LE CARBURE DE BORE

- ❑ **compatibilité** • avec le caloporteur : **inerte dans Na**,  
**soluble dans l'eau** (REL : radiolyse)
  - avec les gaines des aiguilles : formation de boro-carbures
  
- ❑ **sous irradiation** : réaction  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  et déplacements atomiques
  - déplacements atomiques :
    - ✓ pas d'effet visible en réacteur (recuits ou masqués, **études en cours**)
    - ✓ B, C éléments légers : **modérateur** du flux neutronique très efficace
  
  - $^{10}\text{B} + ^1_0\text{n} \rightarrow (^7\text{Li} + \sim 0,95 \text{ MeV}) + (^4\text{He} + \sim 1,65 \text{ MeV})$ 
    - ✓ He : relâchement partiel, **gonflement**
    - ✓ énergie : échauffement (en spectre rapide)

## LE CARBURE DE BORE EN REL

- ✓ REP :  $^{10}\text{B}$  naturel, pastilles petit diamètre à gros grains et faible densité (**frittage naturel**)
- ✓ pastilles empilées en **gaines étanches**
- ✓ section efficace d'absorption très élevée :
  - utilisation en **fonction d'arrêt**
  - absorption uniquement en périphérie,
    - **gonflement radial différentiel**
    - **effritement (micro-fracturation des grains)**
  - taux de relâchement He non connu



4 mm

## LE CARBURE DE BORE EN RNR

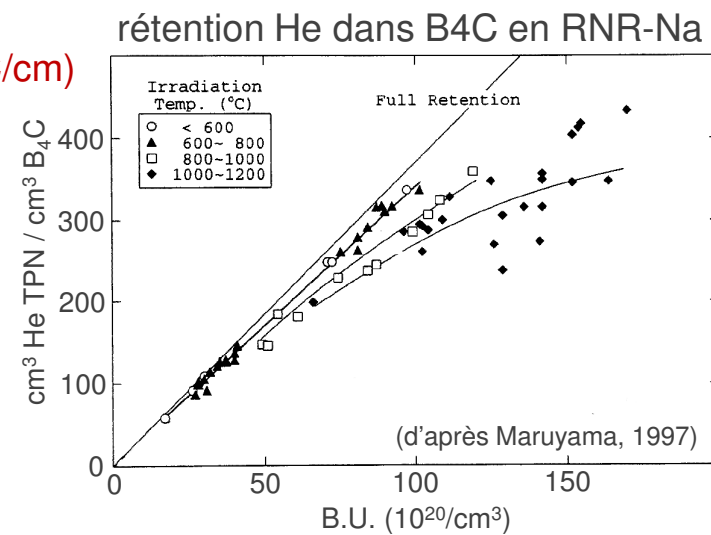
- ✓ pastilles gros diamètre (~20 – 25 mm)
- ✓ section efficace d'absorption faible
  - forte densité (frittage sous charge ~2000°C)
  - $^{10}\text{B}$  enrichi (↗ 90%)
  - absorption ~homogène



- ↗  $10^{22}$  captures/cm<sup>3</sup> en 2 ans (~10% du bore total),
  - 2,6 MeV par capture : ↗ 100 W/cm<sup>3</sup>
  - forts gradients thermiques (↗ 1000 °C/cm)

↗ 350 cm<sup>3</sup> He TPN / cm<sup>3</sup>

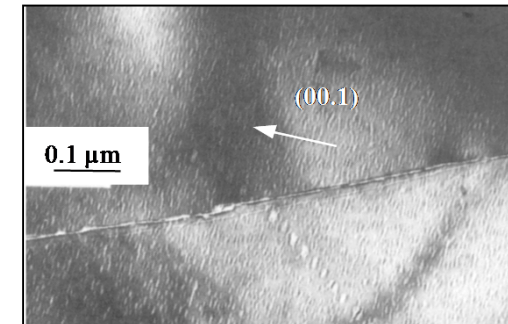
- rétention He ~ 80 %
- gonflement volumique (↗ 15 % à  $10^{22}$  capt./cm<sup>3</sup>)



## LE CARBURE DE BORE EN RNR

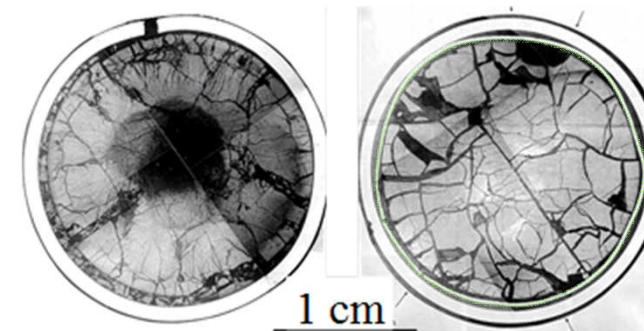
### ☐ Hélium

- ✓ Rétention > 80 % → gonflement
- ✓ Agglomération sous forme de bulles aplaties parallèles
  - gonflement localement anisotrope
  - microfissuration
- ✓ Relâchement partiel
  - **aiguilles avec événements** : Na circule à l'intérieur
  - induit **borocarburation des gaines**



### ☐ Énergie

- ✓ Jusqu'à 100 W/cm<sup>3</sup>
- ✓ Médiocre conductivité thermique
  - forts gradients thermiques
  - fracturation
- ✓ Concept avancé : **pastilles « chemisées »**
  - **Contention des fragments**



140 jepp (Phenix),  
 $1.4 \cdot 10^{22} \text{ }^{10}\text{B/cm}^3$ ,  
 270 W/cm<sup>3</sup>

657 jepp (Phenix),  
 $2.5 \cdot 10^{22} \text{ }^{10}\text{B/cm}^3$ ,  
 180 W/cm<sup>3</sup>

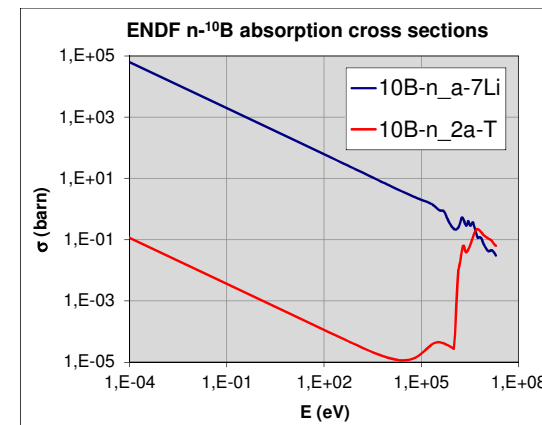
## AVAL DU CYCLE

### ✓ AIC

- Formation de  $^{108}\text{Ag}$  et  $^{110}\text{Ag}$  : forte activité en fin de vie

### ✓ B4C

- Très peu d'activation (impuretés)
- Réaction d'absorption secondaire en spectre rapide
  - production de tritium :  $^{10}\text{B}(n,2\alpha)\text{T}$
  - localement jusqu'à 20 GBq/g
  - problème acceptation ANDRA



## ☐ Hafnium

- ✓ Précurseur historique de AIC
- ✓ Utilisé dans les REB, VVER, PN
- ✓ « résidu » de la métallurgie du zirconium (~2%)
- ✓ Métal dense (**13,3 g/cm<sup>3</sup>**) et réfractaire (**T<sub>f</sub> = 2156 °C**), médiocre conducteur (~20 W/m.K), eutectique Hf-Fe ~1300°C
- ✓ Isotopes fils eux-mêmes absorbants : **efficacité décroît lentement**
  - Ta : précipités, formation inhibée par Nb
- ✓ Structure hexagonale → « croissance » (< 1%)
- ✓ Sous flux neutronique sous eau : formation d'hydrures, gonflement  
Couche d'oxydation passivante et résistante  
→ **Utilisation préférable en barreaux non gainés**
- ✓ Résistance à l'abrasion : additifs et couche de HfO<sub>2</sub>
- ✓ Aval du cycle : **peu actif** (<sup>182</sup>Ta)

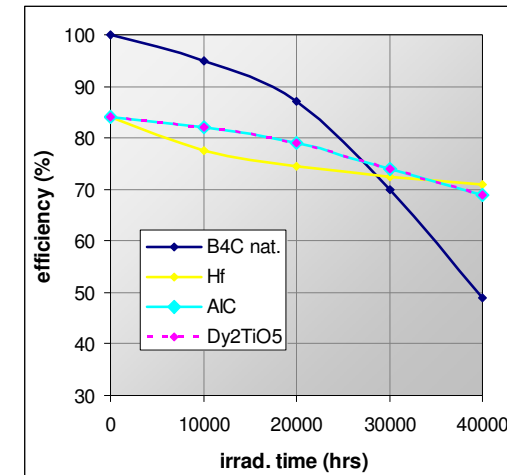
→ **peu d'obstacles à son utilisation en REL** | PAGE 13

## AUTRES MATÉRIAUX (RÉACTEURS À EAU)

### □ Titanate de dysprosium $Dy_2TiO_5$

- ✓ Utilisé dans les **VVER** (« criblage » systématique, et retour d'expérience sur 10 ans en VVER)
  - ✓ Très **réfractaire** ( $T_f = 1870\text{ °C}$ ) et **léger** (densité fritté  $\sim 6,2\text{ g/cm}^3$ )
  - ✓ Terre rare (pas si rare)
  - ✓ Efficacité  $< Eu, Gd, Er \rightarrow$  absorbant  
**semblable à AIC et Hf**
  - ✓ **Inerte** (gaine, eau)
  - ✓ **Peu de dommage d'irradiation** (tq. gonflement, fracturation)
  - ✓ Peu d'activité résiduelle ( $^{166}Ho$  et périodes courtes)
- ➔ peu d'obstacles à son utilisation en REL

Évolution de l'efficacité d'absorbants en VVER (spectre thermique)



### □ Bestiaire

- ✓  $ZrB_2, HfB_2$
- ✓ **HfH**
- ✓  $HfO_2$
- ✓ ...

## CONCLUSIONS

- ❑ La quasi-totalité des réacteurs actuels (Gen-II Gen-III) et envisagés (Gen-IV) utilisent/considèrent B4C, AIC et dans une moindre mesure Hf comme matériaux absorbants
- ❑ Ces choix résultent de considérations neutroniques et matériaux mais aussi « historico-économiques »
- ❑ Les durées de vie actuelles ou garanties des éléments absorbants (grappes, barres de contrôle, protections neutroniques) sont très inférieures aux ambitions initiales
- ❑ La place de AIC en particulier devrait être reconsidérée (économie, sûreté, aval du cycle)
- ❑ Le B4C semble incontournable en spectre rapide



Merci de votre attention



Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives  
Centre de Saclay | 91191 Gif-sur-Yvette Cedex  
T. +33 (0)1 69 08 41 42 | F. +33 (0)1 69 08 71 30

Etablissement public à caractère industriel et commercial | RCS Paris B 775 685 019

DANS  
DMN  
SRMA  
LA2M