



HAL
open science

Densification et homogénéisation U / Pu au cours du frittage de combustibles oxydes mixtes à pO_2 contrôlée

C. Chambon, S. Vaudez, Jean-Marc Heintz

► To cite this version:

C. Chambon, S. Vaudez, Jean-Marc Heintz. Densification et homogénéisation U / Pu au cours du frittage de combustibles oxydes mixtes à pO_2 contrôlée. 15èmes Journées Scientifiques de Marcoule (JSM - 2015), Jun 2015, Bagnols sur Cèze, France. cea-02491622

HAL Id: cea-02491622

<https://cea.hal.science/cea-02491622v1>

Submitted on 26 Feb 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.

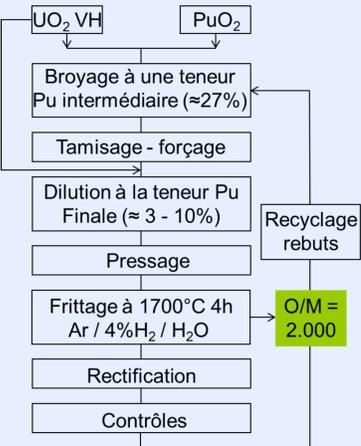
C. Chambon ^a, S. Vaudez ^a, J-M. Heintz ^b

^a CEA, DEN, Cadarache, DTEC/SECA/LFC, Bât 717, 13108 St Paul lez Durance, France,
^b CNRS, ICMCB, UPR 9048, F 33608 Pessac, France.

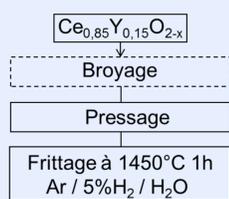
Le combustible nucléaire est une céramique élaborée par une succession d'étapes incluant le cobroyage des poudres dans un broyeur à boulets, la mise en forme à l'aide d'une presse uniaxiale et le frittage. Cette dernière étape consiste à chauffer le solide, à une température inférieure à sa température de fusion afin de souder les grains entre eux et de leur conférer une cohésion tout en diminuant la surface de réaction avec le milieu extérieur. Généralement, lors de cette étape, le comprimé se rétracte, c'est le phénomène de retrait qui contribue à augmenter la densité frittée de la pastille. Cependant, à la fin du frittage du MOX, il peut se produire un phénomène de dé-densification du matériau se traduisant par une augmentation de la porosité fermée et un gonflement de la pastille. Il conduit alors à une diminution de la densité frittée. Ce phénomène est complexe, ses origines sont multiples et les mécanismes qui l'engendrent mal élucidés. C'est pourquoi une étude préliminaire est conduite en inactif sur un simulant de l'oxyde de plutonium : l'oxyde de cérium.

Etude sur matériau inactif avant transposition sur MOX

Procédé REL
(Réacteur à Eau Légère)

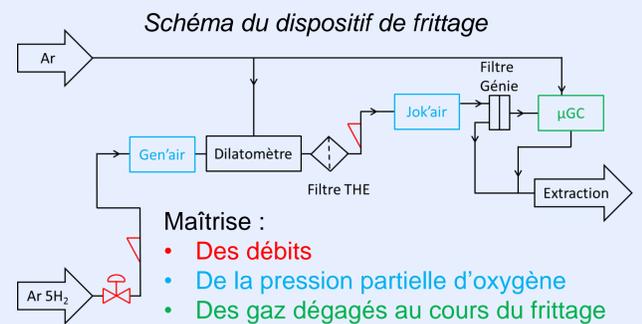


Procédé inactif



Avantages de la cérine

- Facilité de manipulation
- Accès à de grands équipements
- Issue de synthèse oxalique comme le plutonium
- Le cérium possède les mêmes degrés d'oxydation que le plutonium en atmosphère réductrice (+3 et +4)

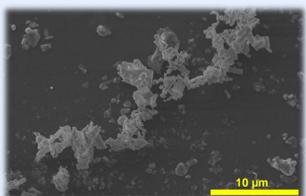


En atmosphère réductrice, l'oxyde de cérium est un bon simulant de l'oxyde de plutonium
Bonne maîtrise du procédé de fabrication, notamment du frittage grâce au REX

Etude de l'effet de la matrice

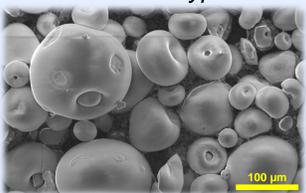
Poudres initiales

Cérine ex-oxalate



Formule chimique $Ce_{0.85}Y_{0.15}O_{2-x}$
Aspect Plaquettes
Surface spécifique $\approx 80m^2/g$

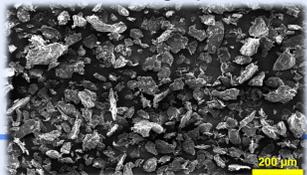
Alumine de type a



Formule chimique Al_2O_3
Aspect Sphérules
Surface spécifique $17,5m^2/g$

Ajout de 5000ppm de carbone

Carbone graphite



Formule chimique C
Aspect Plaquettes
Surface spécifique $3,5m^2/g$

Pressage

Comprimé de cérine



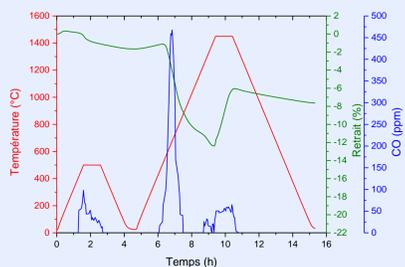
Caractéristiques du pressage

Pressage	Uniaxial
Matrice	\varnothing 7,3 mm tricoquille
Pression appliquée	700 MPa
Durée du maintien	5 s

Comprimé d'alumine

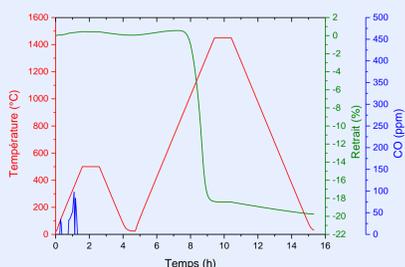


Frittage (dilatométrie)



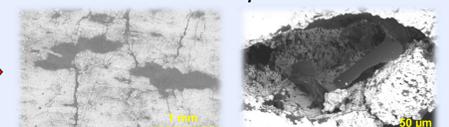
Caractéristiques du frittage

Atmosphère	Ar + 5% H ₂
pO_2	10^{-29} atm
Débit	15,2 L/h
Rampes	5 °C/min
Palier	1450 °C 1h



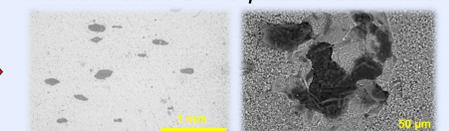
Céramographie

Microstructure d'une pastille de cérine



Porosité importante comprenant du carbone résiduel

Microstructure d'une pastille d'alumine



Pas de porosité autour du carbone
Carbone résiduel piégé dans la matrice

Reproduction du phénomène de dé-densification en inactif
La dé-densification est liée à la présence de carbone, au dégagement de monoxyde de carbone et à la création de porosités

Analyse des gaz occlus

Dispositif mis au point et caractérisé au laboratoire permettant l'extraction et l'analyse des gaz occlus

Résultats d'analyse d'une pastille dé-densifiée

- Dihydrogène H₂ provenant de l'atmosphère de frittage (5% vol)
- Méthane CH₄ lié vraisemblablement à la réaction entre le carbone n'ayant pas réagi et H₂
- Monoxyde de carbone CO dégagé au cours du cycle de frittage

Sous les contraintes de température et de pression à l'intérieur des pores, des réactions chimiques pourraient avoir lieu et expliqueraient la présence de méthane

Perspectives

■ INACTIF

- Analyses XPS et Auger pour déterminer la nature des liaisons entre le carbone et la matrice ainsi que sa répartition au sein de la matrice
- Analyse MET afin d'identifier la présence de porosités y compris aux échelles nanométriques, en lien avec leur formation
- Analyse tomographique sur un cycle de frittage afin de relier et de comprendre l'évolution de la porosité lors de la dé-densification
- Diffraction de rayons X au cours d'un cycle de frittage afin de connaître l'évolution des phases et de la stœchiométrie de la cérine

■ ACTIF

- Transposition des connaissances acquises en inactif en actif
- Nucléarisation du dispositif d'analyse des gaz occlus
- Analyse microsonde pour cartographier l'Argon et le Carbone