



Sujet de Thèse : Etude du frittage d'un MOX homogène

DOMAINE DE RECHERCHE

Science des Matériaux, physique du solide, céramiques, combustible nucléaire

CONTEXTE GENERAL DU SUJET

Les pastilles (petits cylindres ayant un diamètre et une hauteur typiques de l'ordre de 10 mm) de combustible nucléaire MOX (oxyde mixte d' UO_2 et de PuO_2) sont fabriquées par métallurgie des poudres. Les opérations unitaires principales successives sont :

1. la préparation d'un milieu granulaire intégrant une phase de broyage mécanique,
2. le pressage uniaxial du milieu granulaire pour la mise en forme des pastilles,
3. le frittage des pastilles permettant in-fine l'obtention d'une densité relative supérieure à environ 95%.

Les pastilles sont ensuite engagées dans des crayons, qui sont eux-mêmes montés dans des assemblages qui seront introduits dans le cœur du réacteur d'une centrale nucléaire.

C'est pendant la phase de frittage des pastilles de combustible que la densification et le développement de la microstructure opèrent de manière concomitante. Le sujet de cette thèse concerne donc l'étude fine des mécanismes de densification et de croissance granulaire d'un MOX homogène à la base, au niveau de la distribution spatiale des éléments chimiques U et Pu, du fait du procédé de broyage qui sera utilisé. Le but est de construire des cartes de frittage (relation entre la taille de grains et la densité relative) et de croissance granulaire, d'obtenir des valeurs relatives aux énergies d'activation de densification et de croissance granulaires, et de déterminer les mécanismes de diffusion contrôlant ces deux phénomènes, de manière à alimenter dans le futur des codes de simulation numérique.

CONTEXTE EXPERIMENTAL

Le milieu granulaire sera préparé par co-broyage direct de poudres UO_2 et PuO_2 qui seront-elles-mêmes caractérisées en amont : surface spécifique (méthode BET), distribution granulométrique (granulométrie laser) et morphologie (MEB et morpho-granulomètre). Le milieu granulaire obtenu sera caractérisé de la même manière. Deux teneurs en Pu seront considérées : 11 et 26 %mol Pu/(U+Pu). Une référence UO_2 sera également élaborée.

A partir de ces trois matériaux granulaires, des cylindres crus seront mis en forme par pressage uniaxial et caractérisés : densité en cru (mesures géométriques), taille des cristallites élémentaires (MEB).

Les essais de frittage seront réalisés, sur les cylindres crus, au moyen d'un dilatomètre instrumenté. Les variables seront : la vitesse de chauffe, la température de palier thermique, la durée de ce même palier thermique et la pression partielle en oxygène appliquée pendant le cycle.

Suite à cela, des caractérisations seront menées au niveau de la microstructure pour construire les cartes de frittage et de croissance granulaire relatives aux différents matériaux investigués : détermination de la taille de grains (MEB, EBSD), taille et localisation des pores résiduels (MEB),



homogénéité de distribution U/Pu (microsonde électronique), caractérisations fines chimiques et structurales au niveau des joints de grains et dans le cœur des grains (MET).

En parallèle, des analyses par thermogravimétrie seront également réalisées de manière à suivre tout au long du cycle de frittage l'évolution du paramètre O/(U+Pu) ou stœchiométrie en oxygène.

Une fois les cartes de frittage et de croissance granulaire construites, les essais dilatométriques seront exploités finement de manière à calculer les énergies d'activation de densification et de croissance granulaire, mais aussi pour déterminer les mécanismes diffusifs contrôlant ces deux phénomènes. Les méthodes Constant Rates of Heating (CRH, densification) et Master Sintering Curve (MSC, densification et croissance granulaire) seront utilisées.

ENCADREMENT

Laboratoires d'accueil :

- DMRC/SPTC/LSEM : Laboratoire de chimie du Solide et d'Elaboration des Matériaux d'actinides (Marcoule)
- DEC/SA3E/LCU : Laboratoire des Combustibles Uranium (Cadarache)

Encadrants :

- Franck DOREAU (SPTC/LSEM, Marcoule)
- Florent LEBRETON (SASP/LMAT, Marcoule)
- Christelle DUGUAY (SA3E/LCU, Cadarache)

Directeur de thèse : Guillaume BERNARD-GRANGER (SPTC/LSEM, Marcoule)

Ecole doctorale : IMEP-2 (Université Grenoble Alpes), Grenoble

CANDIDAT

Le candidat sera titulaire d'un diplôme d'ingénieur ou d'un master recherche, orienté vers le domaine de la science des matériaux (avec de préférence des connaissances relatives au frittage des matériaux céramiques).

A l'issue de cette thèse, le candidat pourra valoriser des compétences :

- de chercheur,
- relatives à la connaissance approfondie des méthodes permettant d'étudier la densification et la microstructure fine des matériaux céramiques polycristallins,
- de travail en environnement actif avec des matériaux nucléaires.

CONTACTS : par mail uniquement, en joignant CV et lettre de motivation

Guillaume BERNARD-GRANGER : guillaume.bernard-granger@cea.fr

Franck DOREAU : franck.doreau@cea.fr

Christelle DUGUAY : christelle.duguay@cea.fr