

Contribution aux exercices de prospective 2020-2030
Contribution to the 2020-2030 prospective reflection

Energie nucléaire et environnement
Nuclear energy and environment

1) Aperçu / Overview

Thème de recherche proposé : Les gaz rares dans les matériaux du nucléaire

Axe principal concerné : Irradiation des matériaux nucléaires

Contributeur(s) (et affiliations) de la proposition : Eric Gilabert, Denis Horlait (Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux-Gradignan/RADEN)

Email du contact de la proposition : gilabert@cenbg.in2p3.fr ; horlait@cenbg.in2p3.fr

Résumé (500 caractères max., incluant les espaces) :

On rencontre de nombreuses interactions entre les gaz rares (krypton + xénon et hélium) et les matériaux nucléaires, principalement les matrices de déchets et les composants de cœur des réacteurs nucléaires, qu'ils soient à fusion ou à fission. Ces interactions, notamment dans le combustible UO_2 , ont une importance cruciale dans la maîtrise de sûreté des réacteurs et des matrices de déchets. Au CENBG nous travaillons activement sur l'étude de la diffusion de ces gaz dans ces matériaux.

2) Description de la question/problématique scientifique rattachée au thème & Suggestion de projet(s) pouvant répondre à la question/problématique proposée

Les interactions entre gaz rares (principalement hélium, krypton et xénon) et les matériaux du nucléaire sont très couramment rencontrées dans les réacteurs nucléaires actuels et futurs (GenIV et fusion) et peuvent avoir une importance majeure dans la sûreté ou même la faisabilité de certains concepts de réacteurs. Voici les principales occurrences pertinentes des gaz rares en milieux nucléaire et les enjeux associés (liste non-exhaustive) :

_ Au niveau du combustible, Kr et Xe sont parmi les principaux produits de fission. A cause de leur nature gazeuse, ces derniers forment des bulles qui entraînent des modifications majeures des combustibles (fissurations, gonflement) aux conséquences délétères : réductions de l'efficacité énergétique (via la diminution de conductivité thermique) et du taux de combustion maximal du combustible (via des critères de sûreté)¹. La compréhension des interactions Kr+Xe dans UO_2 mais aussi dans tous les combustibles alternatifs (UC , U_3Si_2 , ThO_2 , combustibles avec matrice inerte, etc.) revêt donc une importance cruciale dans l'exploitation industrielle.

_ Par ailleurs dans le cadre d'un stockage direct, l'hélium produit par décroissance α pourra s'accumuler jusqu'à quelques %at. Il est donc nécessaire d'appréhender son influence sur l'évolution du combustible-déchet. Cette problématique de génération à long terme d'He se pose bien évidemment aussi dans les autres matrices de déchets contenant des actinides.

_ Les gaines de combustible se doivent d'être imperméables à la diffusion des produits de fissions volatils et à He, gaz par ailleurs utilisé pour pressuriser ces gaines. Or de nouvelles gaines (SiC/SiC , ZrC , alliages FeCrAl , etc.) sont développés tant pour les ATF (Accident-Tolerant Fuel) que pour les réacteurs GenIV et sont donc autant de matériaux qu'il faudra caractériser vis-à-vis de la diffusion des gaz rares.

_ Des absorbeurs de neutrons, en premier lieu le carbure de bore (B_4C), opèrent par capture (n,α) et génèrent donc un ^4He par neutron capté. Dans des concepts GenIV, le taux maximal de combustion pourrait dépasser les 10 at.%. Il est donc primordial d'étudier l'influence de ce gaz rare dans l'évolution des absorbeurs neutroniques en réacteur².

_ Dans les réacteurs à fusion, des matériaux de structure (W , WC , Mo , aciers ODS et autres alliages sont notamment envisagés) devront pouvoir tolérer d'importantes fluences d'ions He de hautes énergies.

Au CENBG, équipe RADEN, nous travaillons depuis une quinzaine d'années sur ces problématiques¹⁻⁹. Sur notre plateforme de spectrométrie de masse dédiée aux gaz rares PIAGARA, nous réalisons des travaux de TDS (*Thermo-Desorption Spectrometry*) qui permettent d'étudier le comportement de diffusion des gaz rares dans les matériaux d'intérêt. N'ayant pas de moyens propres de préparation de matériaux, nous fonctionnons depuis toujours par collaborations avec de nombreux organismes travaillant sur les interactions gaz rares / matériaux nucléaires (voir [Collaborateurs](#)).

Comme sous-entendu dans la liste des interactions gaz rares / matériaux du nucléaire, le projet que nous souhaitons proposer est la continuation des études des caractéristiques de diffusion des gaz rares dans les matériaux nucléaires. En effet de nombreux travaux sont encore nécessaires sur les matériaux actuellement exploités industriellement (UO_2) et bien plus sont à prévoir sur les candidats pour les différents concepts de réacteurs GenIV et à fusion. Ce projet s'inscrit ainsi pour nous dans la durée : nous sommes raisonnablement confiants que les besoins pour ce type d'étude vont perdurer de nombreuses années voire s'accroître. A ce titre au CENBG, nous amenons des innovations

pour enrichir nos capacités d'études de ce sujet. Ceci a été concrétisé récemment avec la mise en service de la ligne de chauffage laser L2PAON qui ouvre de nouvelles perspectives au niveau des traitements thermiques et de l'atmosphère de recuit (jusqu'à quelques mbar de O₂)².

L'étude des propriétés de diffusion des gaz rares dans les matériaux du nucléaire est un travail de longue haleine, la cause principale étant la multitude des paramètres expérimentaux d'influence à couvrir, tels que température de traitement, microstructure du matériau (dont traitement de polissage de surface), paramètres d'implantation ionique, etc. Spécifiquement pour UO₂, la stœchiométrie en oxygène et les propriétés de transport de l'oxygène ont un effet décisif dans le comportement de diffusion des gaz rares et sont essentielles pour comprendre et modéliser le comportement des combustibles oxydes à toutes les étapes de leur cycle de vie : fabrication, irradiation en réacteur, entreposage ou stockage. En particulier, bien que ses conséquences soient majeures, le phénomène de transport de l'oxygène dans le gradient de température auquel sont soumis les matériaux combustibles (notamment en réacteur : gradient radial > 100°C/mm) n'a fait l'objet que d'un nombre très limité d'études. En collaboration avec le CEA/DEC de Cadarache, nous débutons une collaboration (projet NEEDS-ProTON) programmée sur plusieurs années pour caractériser les diffusions chimiques et thermiques de l'oxygène puis des gaz rares.

Le dynamisme de cette thématique de recherche est confirmée par les nombreuses collaborations récentes, en cours ou à venir dans lesquelles nous participons (voir [Collaborateurs](#)). Il apparaît ainsi comme nécessaire que l'IN2P3 continue à soutenir cette thématique via le soutien aux Master Projets, mais aussi via le programme NEEDS qui a été et nous l'espérons sera encore un moyen efficace et utile pour financer ce type de travaux.

Collaborateurs (personnes ou organismes) identifiés ou potentiels (dans et hors IN2P3) :

_ **CEA/DEN/DEC – Cadarache** : G. Carlot, P. Garcia

Collaborations sur l'étude de la diffusion de Kr et Xe dans UO₂ dans le cadre des projets Euratom INSPYRE (2018-2021) incluant la thèse de M.-L. Amany, NEEDS-ProTON (en instruction, 2020-2021? + thèse 2021-2024?), NEEDS TRANSCOMB (2016-2017) et des thèses de A. Michel⁹ (2008-2011) & M. Gérardin¹ (2015-2018)

_ **CEMTHI Orléans (CNRS/INC)** : P. Desgardin, M.-F. Barthe

Collaborations idem CEA/DEN/DEC – Cadarache + thèse F. Linez⁴ (2009-2012 diffusion de He dans SiC)

_ **ITU (JRC)** : T. Wiss

Collaboration sur l'étude des gaz rares dans UO₂ dans le cadre d'INSPYRE et de la thèse de Z. Talip⁵ (2010-2013)

_ **CEA/DEN/DEC – Saclay** : D. Gosset

Collaboration sur l'étude de la diffusion de He dans B₄C² dans le cadre du projet NEEDS MATABS (2017-2019) et de la thèse de V. Motte³ (2015-2018)

_ **CSNSM, GEOPS (CNRS/INSU), et IPNO** : A. Gentils, C. Gautheron, J. Roques

Collaboration sur l'étude de la diffusion de He dans les composants d'aciers ODS dans le cadre du projet NEEDS DIFHeODS (en instruction, 2020-2021 ?) et de la thèse de V. Oliveira-Cavalcanti (2019-2022)

Instruments/Outils impliqués :

_ **PIAGARA** (Plateforme Interdisciplinaire d'Analyse des Gaz Rares en Aquitaine), CENBG

_ Régulièrement : implantateurs ioniques français, plateformes de microscopies électroniques

Merci de renvoyer ce document à prosp2020-GT11-copil-l@in2p3.fr avant le
1er Novembre 2019

Références

- [1] M. Gérardin, Etude du comportement thermique des gaz de fission dans l'UO₂ en présence de défauts d'irradiation, Thèse de l'Université d'Orléans, 2018.
- [2] D. Horlait, D. Gosset, A. Jankowiak, V. Motte, N. Lochet, E. Gilibert, Experimental determination of intragranular helium diffusion rates in boron carbide (B₄C), *J. Nucl. Mater.* **527** (2019) 151834.
- [3] V. Motte, Comportement de l'hélium implanté dans le carbure de bore B₄C, Thèse de l'Université Claude Bernard (Lyon), 2017.
- [4] F. Linez, E. Gilibert, A. Debelle, P. Desgardin, M.-F. Barthe, Helium interaction with vacancy-type defects created in silicon carbide single crystal, *J. Nucl. Mater.* **436** (2013) 150-157.
- [5] Z. Talip, T. Wiss, E.A. Maugieri, J.-Y. Colle, P.-E. Raison, E. Gilibert, M. Ernstberger, D. Staicu, R.J.M. Konings, Helium behaviour in stoichiometric and hyper-stoichiometric UO₂, *J. Eur. Ceram. Soc.* **34** (2014) 1265-1277.
- [6] P. Garcia, E. Gilibert, G. Martin, G. Carlot, C. Sabathier, T. Sauvage, P. Desgardin, M.-F. Barthe, Helium behaviour in UO₂ through low fluence ion implantation studies, *Nucl. Inst. Met. Phys. Res. B* **327** (2014) 113-116.
- [7] A. Ozgumus, E. Gilibert, N. Dacheux, C. Tamain, B. Lavielle, Study of radiogenic helium diffusion in the β-thorium phosphate diphosphate ceramic, *J. Nucl. Mater.* **373** (2008) 112-118.
- [8] C. Viaud, S. Maillard, G. Carlot, C. Valot, E. Gilibert, T. Sauvage, C. Peaucelle, N. Moncoffre, Behaviour of helium after implantation in molybdenum, *J. Nucl. Mater.* **385** (2009) 294-298.
- [9] A. Michel, Etude du comportement des gaz de fission dans le dioxyde d'uranium : mécanismes de diffusion, nucléation et grossissement de bulles, Thèse de l'Université de Caen, 2011.