

Etude de la migration thermique du Xe dans le TiN fritté

Rencontres Jeunes Chercheurs 2008

René Bes

Groupe Aval du Cycle Electronucléaire
IPNL, Université de Lyon, Université Lyon 1, CNRS/IN2P3

Directrice de thèse: N.Millard-Pinard

Co-directeur de thèse: S.Gavarini

Janvier 2009



In2p3



Contexte de l'étude

➤ Les réacteurs nucléaires du futur, *i.e.* génération IV

Pourquoi une génération IV ?

✓ Economie des ressources en uranium

• Consommation de l' ^{238}U (^{235}U actuellement) par des neutrons rapides ($E > 2\text{MeV}$ vs 0.4 keV actuel) :

$^{238}\text{U} + n \rightarrow \text{Pu}$ (fissile)

✓ Réduction des déchets

• Consommation des actinides mineurs comme Pu

✓ Cogénération comme la production d' H_2

• Hautes températures ($>1000^\circ\text{C}$ vs 300°C actuel)

Contexte de l'étude

- Plusieurs systèmes envisagés dont le « RNR-G »
(Réacteur à neutrons rapides et caloporteur gaz)

– Cycle du combustible « fermé » : surgenerateur

Matrice Caloporteur hélium

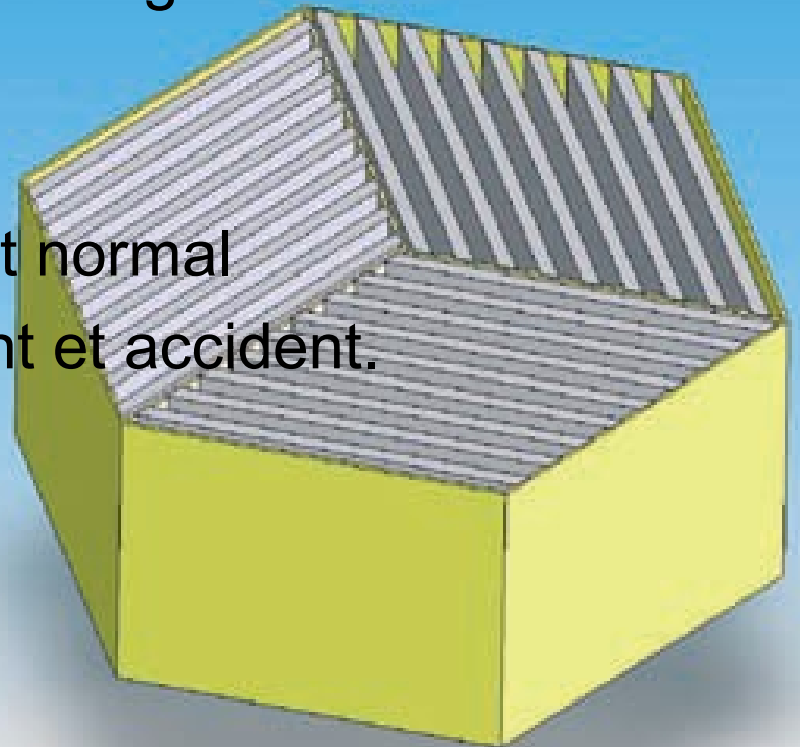
– Neutrons rapides

– 1200°C environ: fonctionnement normal

– Jusqu'à 1600°C ou plus: incident et accident.

Pastilles de combustible

tré
re

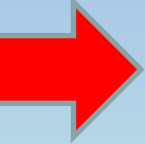


Contexte de l'étude

- Combustibles candidats : (U,Pu)C ou (U,Pu)N
 - ➔ Carbures et/ou nitrures comme matrices inertes : SiC, ZrC, ZrN, TiC, **TiN**
 - ➔ Rétention des produits de fission volatiles et/ou abondants comme Cs, I, **Xe**

Quid de la rétention thermique des produits de fission ?

Etat de l'art

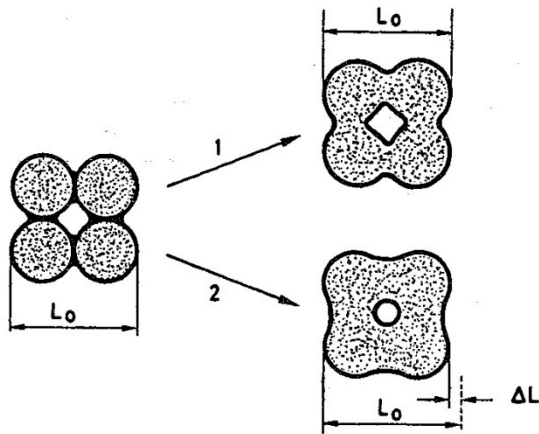
- Un des produits de fission les plus abondants (>20%) et peu soluble: **Xénon**
 - Formation de complexes lacunes-Xe et de bulles
→ Gonflement, décohésion des joints de grains et fractures du matériaux (intégrité du matériaux mise en danger)
 - Une des matrices inertes : **Nitride de Titane**
 - Très utilisé en micro-électronique comme barrière de diffusion
→ Influence de la microstructure et des impuretés observée!
 - Seules quelques études sur la migration des produits de fission dans TiN
-  **Influence de la microstructure sur la migration thermique du Xe dans le TiN fritté?**

Protocole expérimental

Un protocole particulier :

2. Synthèse de TiN à l'INSA de Lyon: Grossissement des grains durant le frittage sous presse à chaud pour différentes températures de frittage : de 1800 à 2000°C

3. Implantation en surface (150 nm de profondeur) de xénon



Taille de grain finale (1 μm initialement)

6+/- 2 μm

8+/- 3 μm

11+/- 4 μm

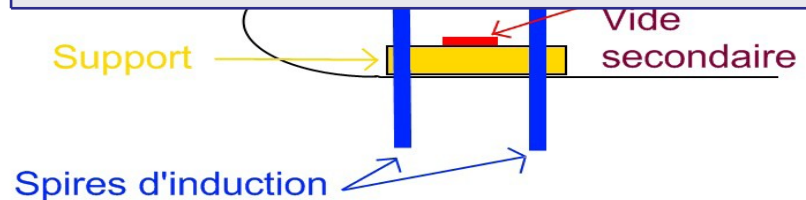
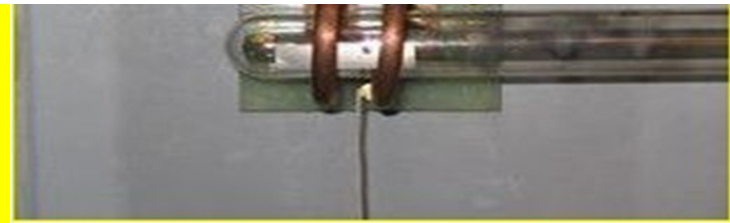
22+/- 8 μm

38+/- 10 μm

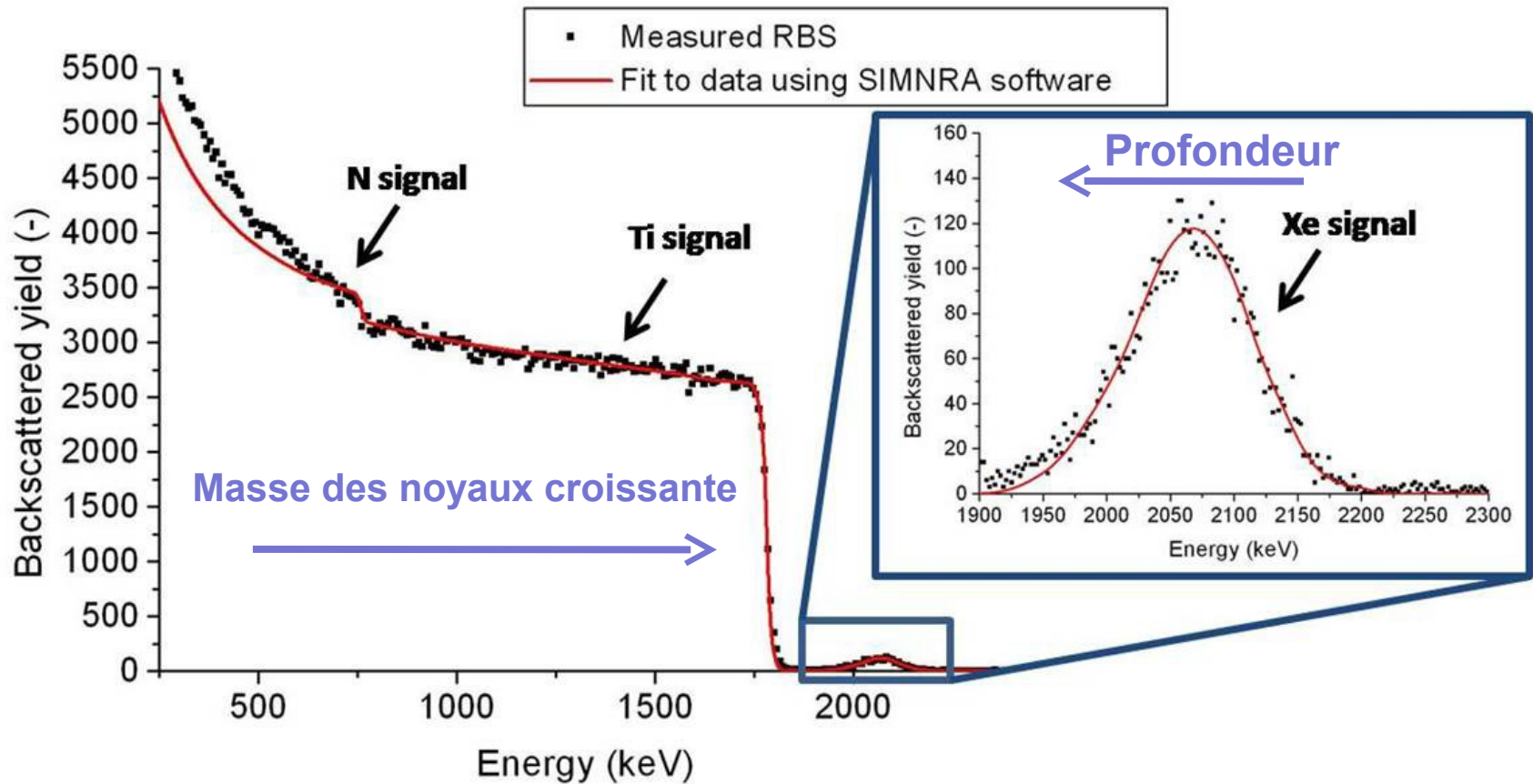
Support

Vide
secondaire

Spires d'induction

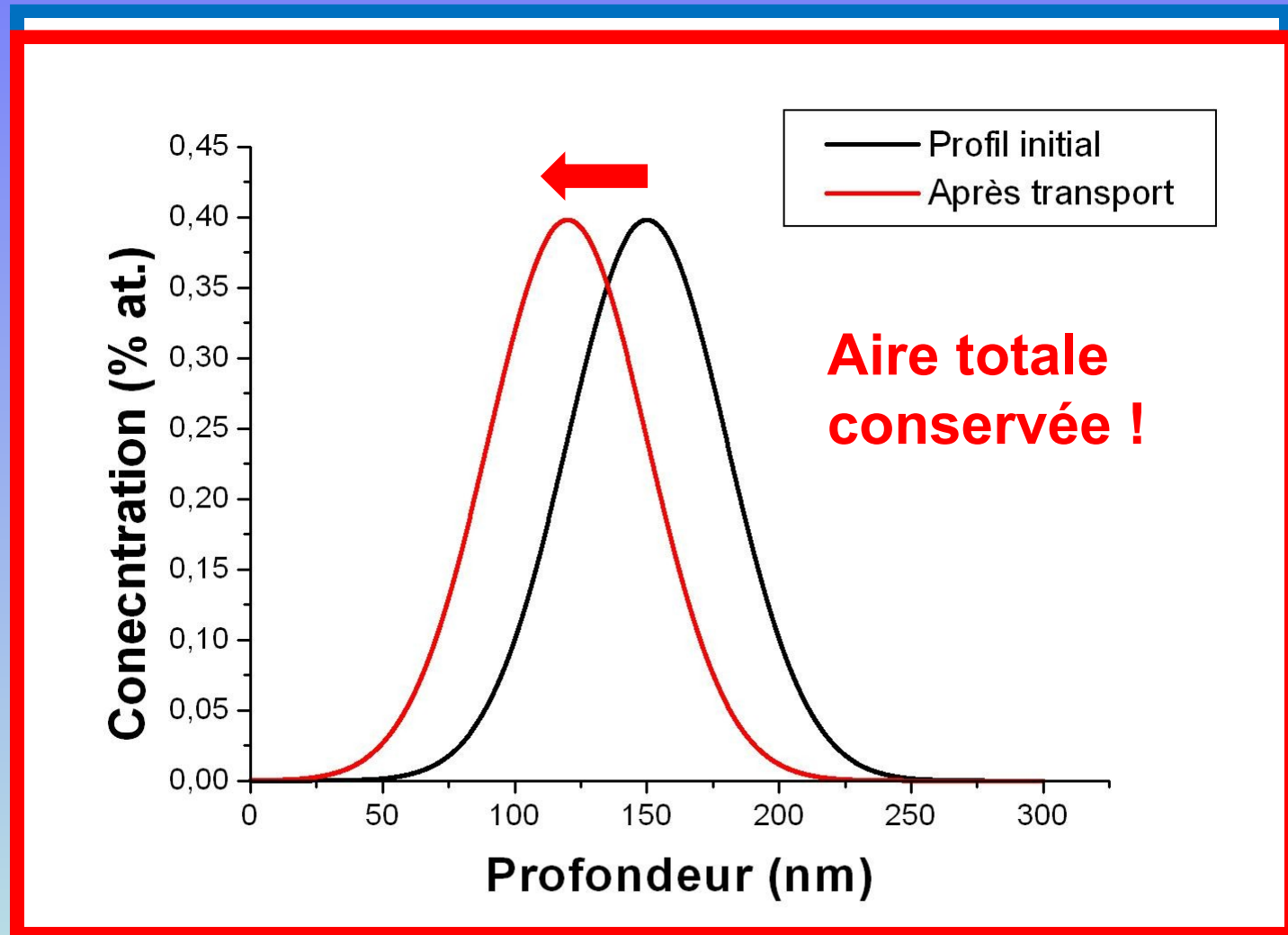


Spectroscopie de rétrodiffusion Rutherford



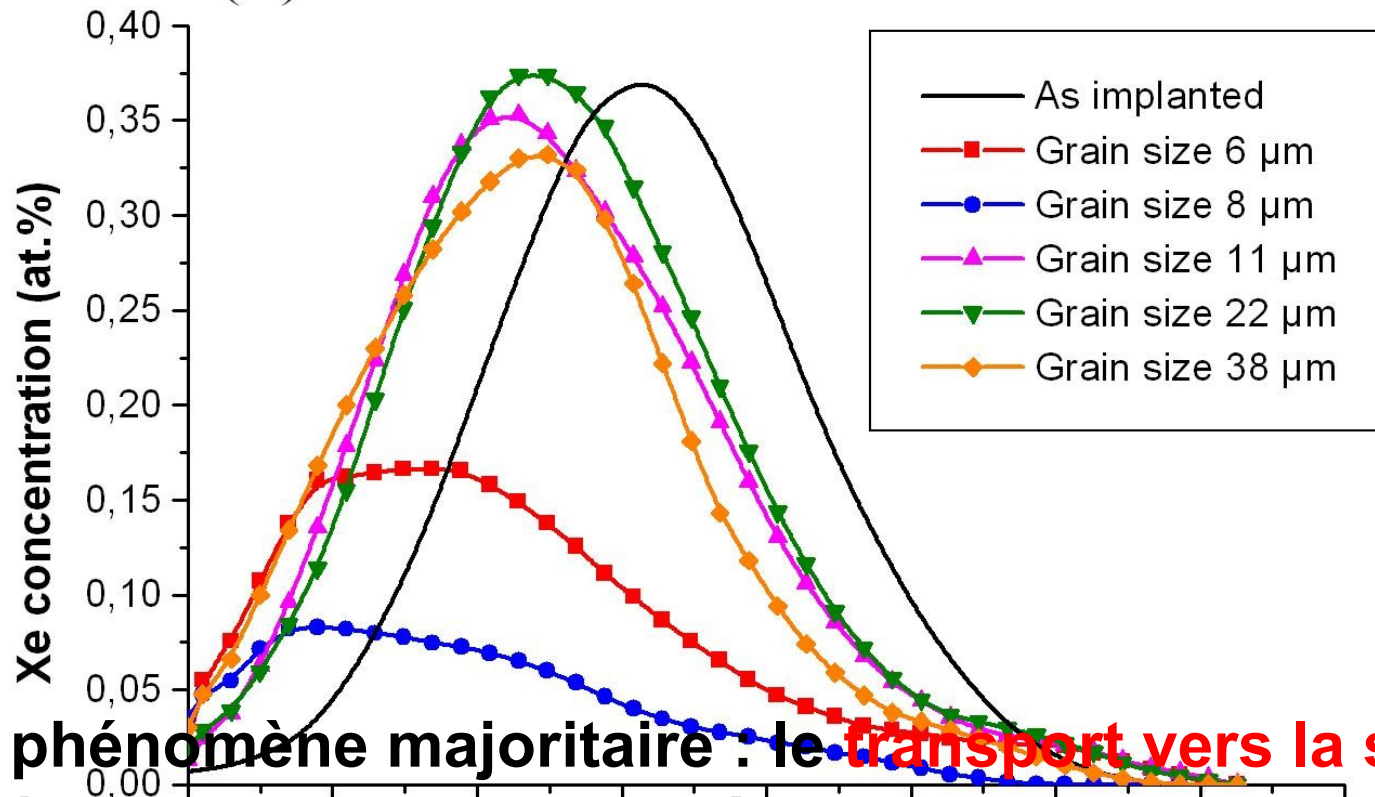
Effet de la température

Effet de la température sur le profil initial d'implantation



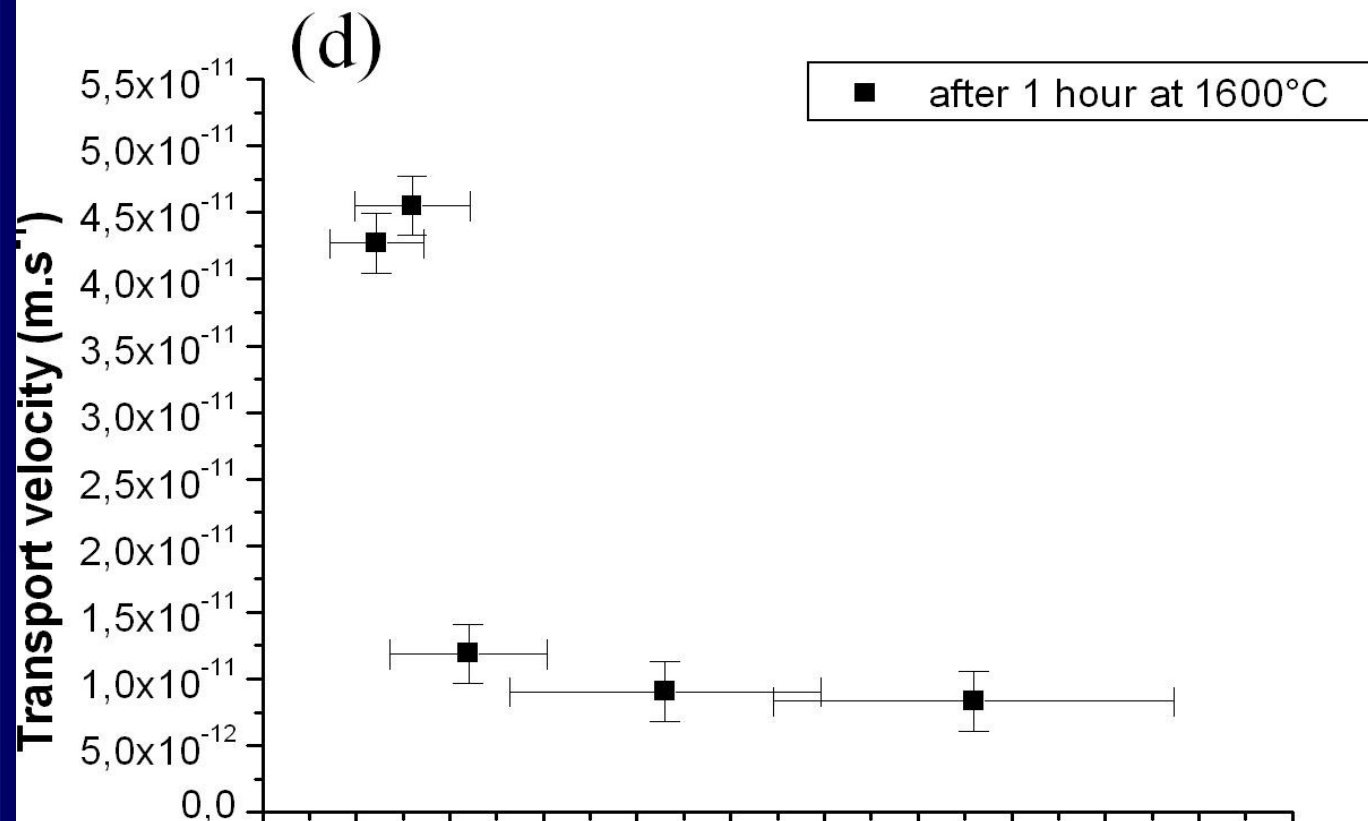
Résultats : évolution des profils

(d) 1600°C - 1 hour



- ⇒ Un phénomène majoritaire : le transport vers la surface
- ⇒ Relâchement comme conséquence du transport
- ⇒ Influence de la taille des grains visible

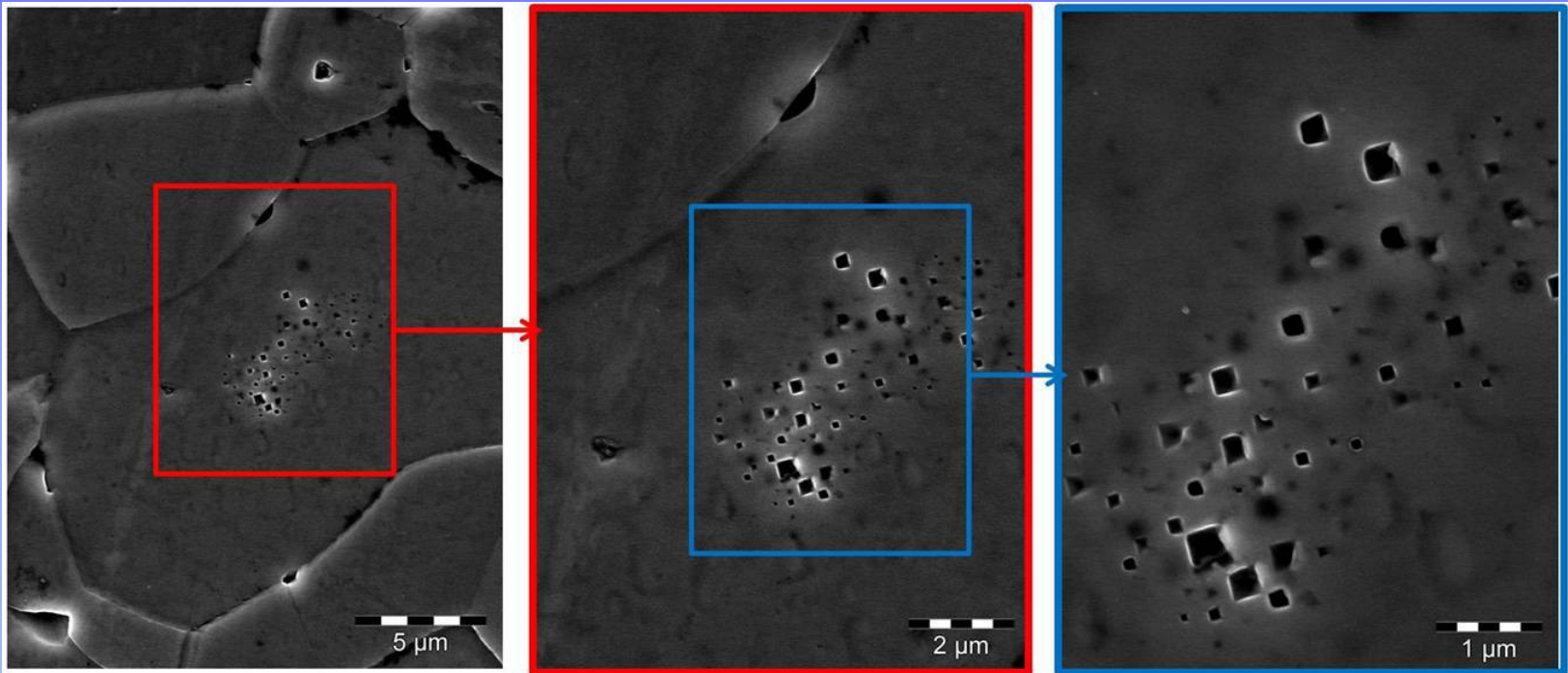
Résultats : effet de la microstructure



⇒ **Effet de seuil** de la taille de grain sur le transport vers la surface autour de $10 \mu\text{m}$ grain size (μm)

Résultats: état de surface

Analyse en microscopie électronique à balayage



11 μm grain size implanted sample ($5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-2}$) annealed 5 hours at 1500°C

⇒ Cavités: formation de bulles de Xe? De N_2 ? De Xe + N_2 ?

⇒ Au centre de grains:

- influence des joints de grains ?
- hétérogénéité des grains et dans le grain?

Conclusions

- Migration thermique du Xe dans le TiN:
 - Un phénomène majoritaire : **transport vers la surface**
 - Conséquence: relâchement
- Influence de la microstructure:
 - Taille de grain : **effet de seuil**
- Intégrité du matériau:
 - Modification de la surface: **présence de cavités au centre des grains**
 - Elargissement des joints de grain

Perspectives

De nombreuses questions ouvertes :

- Quel(s) mécanisme(s) de diffusion ?
- Quelle force à l'origine du transport vers la surface ?

⇒ *Calculs Ab Initio et modélisation*

- Bulles de Xe ou non ?
- Pourquoi un effet de seuil ?

⇒ *Expérience EXAFS à l'ESRF en avril 2009 et MET*

- Hétérogénéité selon le grain et dans le grain ?

⇒ *Expérience micro sonde en cours d'analyse*