

Soutenance de thèse

Institut de Chimie Séparative de Marcoule / CEA Marcoule
(UMR 5257, CEA, CNRS, Université Montpellier, ENSCM)

VICTOR TRILLAUD

soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Approche expérimentale du modèle à deux grains : premier stade du frittage de microsphères UO_{2+x} et UO_{2+x}/CeO_2

Soutenance prévue le **jeudi 12 décembre 2019 à 10h00**

dans l'Auditorium de l'ICSM

Le frittage est une étape clé lors de la fabrication des pastilles de combustible nucléaire de type UO_x et MO_x (oxyde mixte $(U,Pu)O_2$) utilisées dans les réacteurs à eau pressurisée. La première étape de ce processus, qui consiste en la formation et la croissance d'un pont entre les grains conduisant à la consolidation du matériau joue alors un rôle crucial. Elle est généralement décrite par des modèles mathématiques mettant en jeu deux grains sphériques au contact. Cette étude propose ainsi une approche expérimentale de la première étape du frittage de matériaux céramiques d'intérêt pour le cycle du combustible électronucléaire, en particulier via des observations in situ par microscopie électronique à balayage en mode environnemental à haute température (MEBE-HT). Dans un premier temps, un protocole de synthèse robuste et reproductible permettant l'obtention de particules sphériques d'oxydes d'uranium et d'oxyde mixte $(U,Ce)O_{2+x}$ de taille contrôlée a été développé. Par la suite, des observations expérimentales du premier stade du frittage des oxydes UO_{2+x} ont été réalisées dans différentes conditions d'atmosphère et de température. Les données quantitatives obtenues par analyse d'image ont alors permis de déterminer les valeurs des énergies d'activation et le mécanisme de diffusion prépondérant pour différents oxydes sur-stœchiométriques et pour U_3O_8 . Dans le cas d'un frittage en milieu réducteur, des expériences complémentaires en mode ex situ et par microscopie électronique à transmission à haute température ont permis d'identifier un mécanisme en deux étapes, basé sur la croissance des cristallites constituant les particules sphériques puis sur la formation et la croissance du pont entre les deux particules. Enfin, une étude préliminaire portant sur des systèmes hétérogènes ($UO_2 - CeO_2$) a été entreprise. Les observations effectuées mettent en avant une modification importante de l'évolution morphologique du système à deux grains, sous-tendue par une complexification des mécanismes de diffusion mis en jeu (diffusion préférentielle de l'uranium dans l'oxyde de cérium, notamment). Les premiers essais réalisés sur des solutions solides homogènes $(U,Ce)O_2$, ont en revanche montré un comportement conforme à celui habituellement décrit par les modèles. La stœchiométrie des composés mis en jeu lors du frittage d'oxydes d'actinides, mais également leur homogénéité, doivent donc être soigneusement pris en compte afin d'établir des modèles prédictifs.

Mots clés : Frittage ; HT-MEBE ; UO_2 ; $(U,Ce)O_2$

