

Les matériaux absorbants neutroniques, propriétés et comportement en réacteur

D. Gosset

▶ **To cite this version:**

D. Gosset. Les matériaux absorbants neutroniques, propriétés et comportement en réacteur. Contrôle de la réactivité et absorbants neutroniques, SFEN; UICF, Nov 2016, Paris, France. cea-02435107

HAL Id: cea-02435107
https://cea.hal.science/cea-02435107

Submitted on 10 Jan 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.

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE
cea den

ST6 SFEN
Physique des Réacteurs

LES MATÉRIAUX ABSORBANTS NEUTRONIQUES, PROPRIÉTÉS ET COMPORTEMENT EN RÉACTEUR

Dominique GOSSET *(CEA, Paris-Saclay Univ.)*

23 novembre 2016

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE
cea den

Sommaire

- rappel des contraintes conduisant aux choix matériaux
- cas des réacteurs à eau
  - l'alliage AIC
  - le carbure de bore
- cas des réacteurs à neutrons rapides : le carbure de bore
- autres matériaux
- conclusion

LE CHOIX D'UN MATÉRIAU ABSORBANT

- contraintes neutroniques : exigences pour le pilotage et le contrôle des réacteurs

  (spectre thermique ou rapide, absorbant ou poison, contrôle ou arrêt…)

- comportement sous irradiation

  (gonflement, produits de réaction, évolution de l'efficacité…)

- compatibilité avec les composants du cœur (structure, caloporteur)

  (solubilité, eutectiques, réactions solide-solide…)

- sûreté (température de fusion, production de gaz…)

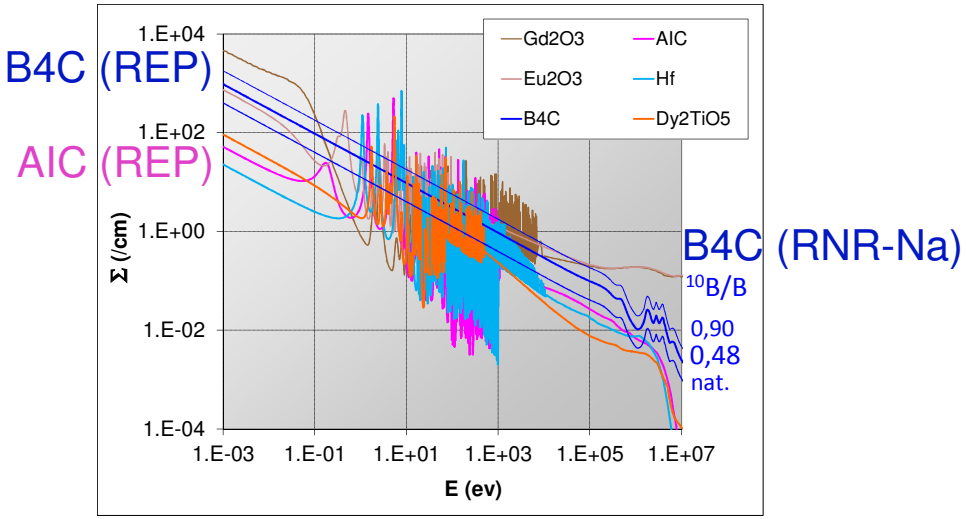
- disponibilité, coût

  (filière industrielle, militaire, recherche…)

- aval du cycle, filière déchets

LE CHOIX D'UN MATÉRIAU ABSORBANT

- contraintes neutroniques : exigences pour le pilotage et le contrôle des réacteurs



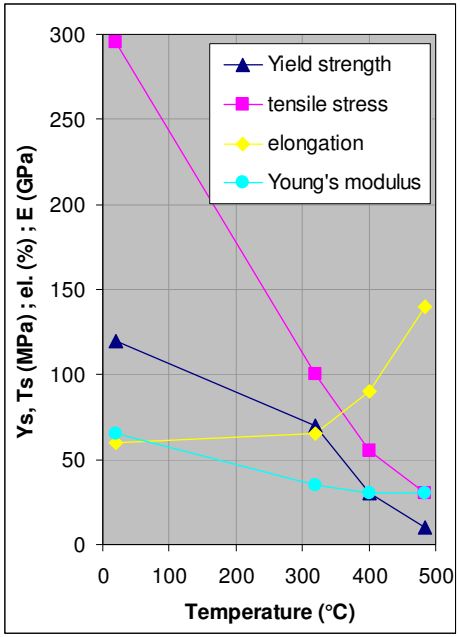
section efficace d'absorption neutronique ***macroscopique*** *pour quelques matériaux courants*

- absorption neutronique signifie réactions nucléaires :
  - évolutions isotopiques et de composition, efficacité
  - limites de solubilité, changements de phase…

L'ALLIAGE AIC (Ag-In-Cd) DANS LES REP

- Alliage ternaire 80 %m Ag, 15 %m In, 5 %m Cd
  - ✓ « inventé » en 1956 pour suppléer au manque de hafnium (réacteurs militaires)
  - ✓ Ag, Cd : absorption neutronique ; In : résistance corrosion
  - ✓ proportions : compromis efficacité et structure métallurgique (monophasé)

- Propriétés thermo-physiques
  - ➢ solution solide, structure cfc
  - ➢ densité 10,17 g/cm^3 (id. UO_2)
  - ➢ conductivité thermique :
    20°C : 55 W/m.K
    400°C : 82 W/m.K
  - ➢ T_f 800°C : le composant le plus « fusible » du cœur
    - ➔ Fluage, tassement
      - ✓ recuit des défauts
      - ✓ forte mobilité atomique (diffusion)



L'ALLIAGE AIC (Ag-In-Cd)

- réactions d'absorption :

  Ag → *Ag → Cd

  Cd → Cd

  In → Sn

Alliage (% at.)	Ag	Cd	In	Sn
Non irradié	80,8	4,9	14,3	--
Irradié (8 cycles REP)	68,1	17,8	7	7,1

Sn > 1,7% at. : précipitation d'une nouvelle phase

- Moins compacte

⇒ gonflement

- Conductivité thermique abaissée

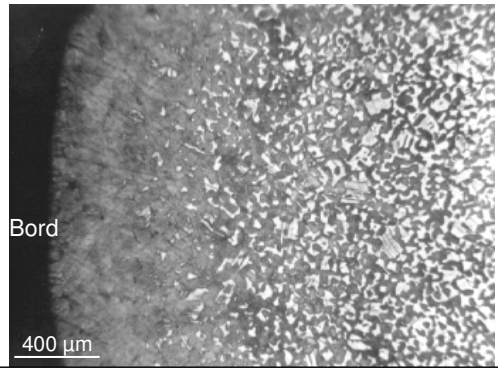
⇒ échauffement

- Tf < Tf(AIC)

Microstructure de l'AIC irradié (4 cycles REP) :

• plages claires : phase cubique initiale

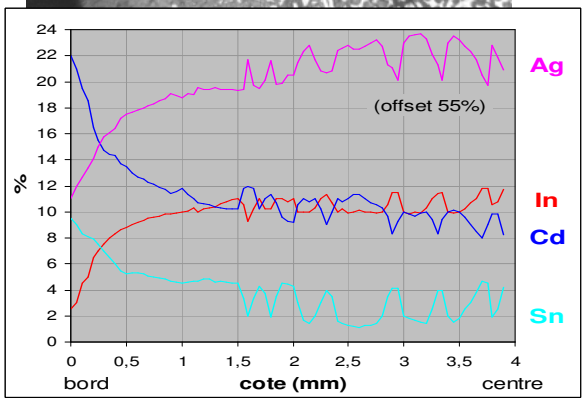
• plages sombres : nouvelle phase (hexagonale) riche en étain



Profils microsonde :

• courbure : profil de captures

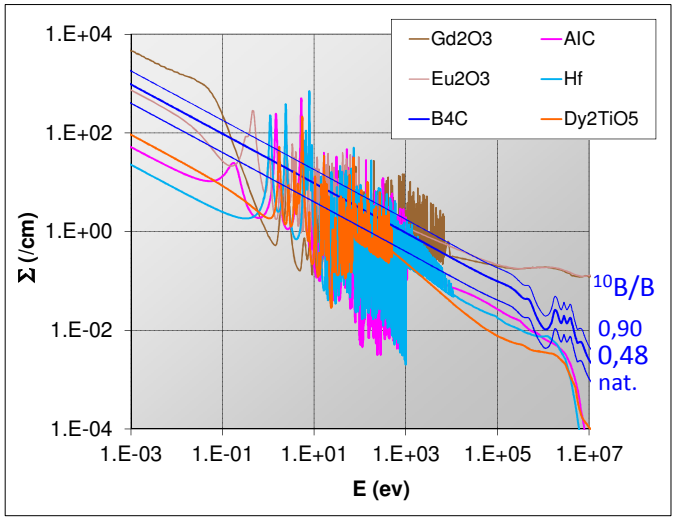
• sauts : biphasé



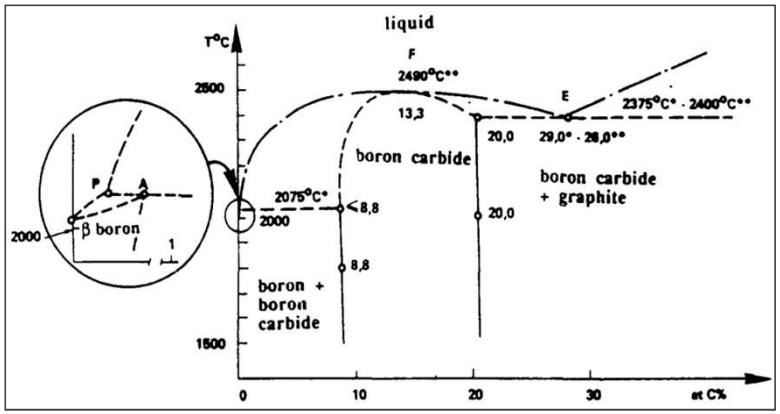
- Gonflement, tassement : fortes contraintes sur la gaine (fissuration)
- durée de vie réduite

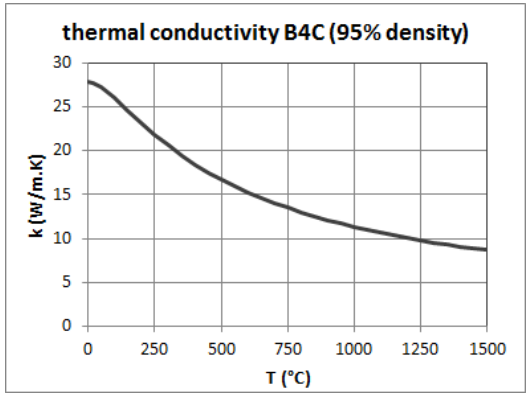
LE CARBURE DE BORE ”B4C”

- très utilisé : blindages, outils, abrasifs…
- composition habituelle proche de B_4C
- appro : Chine, USA…
- bore : environ 20 %at. ^{10}B dans le bore naturel, peut être enrichi (ou appauvri) : 0,5 – 99,5 %at.
- léger (2,5 g/cm^3), céramique fragile (K_{1C}~5 MPa√m)
- haute température de fusion
- semiconducteur : conductivité thermique ~ 1/T



macroscopic *neutron absorption cross section*





LE CARBURE DE BORE

- compatibilité • avec le calporteur : inerte dans Na,
  soluble dans l'eau (REL : radiolyse)
  • avec les gaines des aiguilles : formation de boro-carbures

- sous irradiation : réaction $^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ et déplacements atomiques
  - déplacements atomiques :
    - ✓ pas d'effet visible en réacteur (recuits ou masqués, études en cours)
    - ✓ B, C éléments légers : modérateur du flux neutronique très efficace
  - $^{10}B + {}^{1}n \rightarrow (^{7}Li + \sim 0{,}95\ MeV) + (^{4}He + \sim 1{,}65\ MeV)$
    - ✓ He : relâchement partiel, gonflement
    - ✓ énergie : échauffement (en spectre rapide)

LE CARBURE DE BORE EN REL

- ✓ REP : ^{10}B naturel, pastilles petit diamètre à gros grains et faible densité (frittage naturel)
- ✓ pastilles empilées en gaines étanches
- ✓ section efficace d'absorption très élevée :
  - ➢ utilisation en fonction d'arrêt
  - ➢ absorption uniquement en périphérie,
    - gonflement radial différentiel
    - effritement (micro-fracturation des grains)
- ➢ taux de relâchement He non connu





LE CARBURE DE BORE EN RNR

- ✓ pastilles gros diamètre (~20 – 25 mm)
- ✓ section efficace d'absorption faible
  - ➢ forte densité (frittage sous charge ~2000°C)
  - ➢ ^{10}B enrichi (↗ 90%)
  - ➢ absorption ~homogène



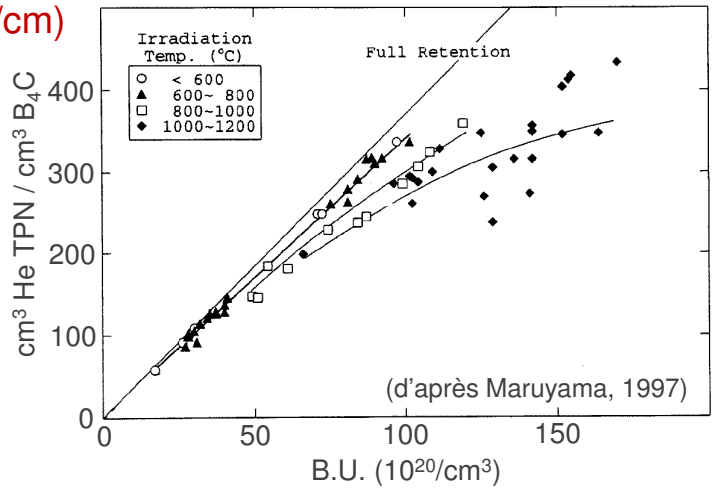
↗ 10^{22} captures/cm^3 en 2 ans (~10% du bore total),

- ➢ 2,6 MeV par capture : ↗ 100 W/cm^3
- ➢ forts gradients thermiques (↗ 1000 °C/cm)

↗ 350 cm^3 He TPN / cm^3

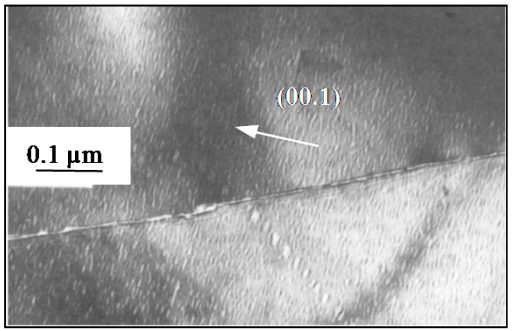
- ➢ rétention He ~ 80 %
- ➢ gonflement volumique (↗ 15 % à 10^{22} capt./cm^3)

rétention He dans B4C en RNR-Na

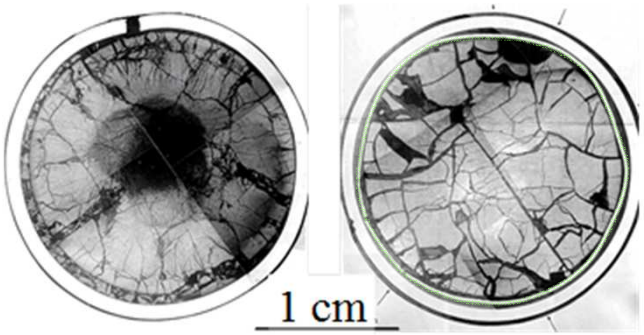


LE CARBURE DE BORE EN RNR

- Hélium
  - ✓ Rétention > 80 % ➔ gonflement
  - ✓ Agglomération sous forme de bulles aplaties parallèles
    - ➔ gonflement localement anisotrope
    - ➔ microfissuration
  - ✓ Relâchement partiel
    - ➔ aiguilles avec évents : Na circule à l'intérieur
    - ➔ induit borocarburation des gaines



- Énergie
  - ✓ Jusqu'à 100 W/cm^3
  - ✓ Médiocre conductivité thermique
    - ➔ forts gradients thermiques
    - ➔ fracturation
  - ✓ Concept avancé : pastilles « chemisées »
    - ➔ Contention des fragments



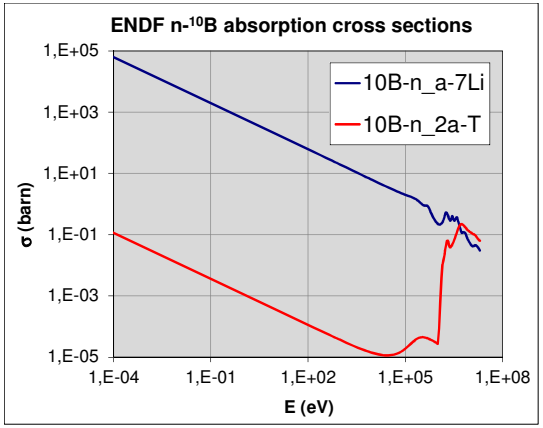
140 jepp (Phenix), 1.4.10^{22} ^{10}B/cm^3, 270 W/cm^3

657 jepp (Phenix), 2.5.10^{22} ^{10}B/cm^3, 180 W/cm^3

AVAL DU CYCLE

- ✓ AIC
  - ➢ Formation de ^{108}Ag et ^{110}Ag : forte activité en fin de vie

- ✓ B4C
  - ➢ Très peu d'activation (impuretés)
  - ➢ Réaction d'absorption secondaire en spectre rapide
    - ➢ production de tritium : $^{10}B(n,2\alpha)T$
    - ➢ localement jusqu'à 20 GBq/g
    - ➢ problème acceptation ANDRA



AUTRES MATÉRIAUX (RÉACTEURS À EAU)

❑ Hafnium

- ✓ Précurseur historique de AIC
- ✓ Utilisé dans les REB, VVER, PN
- ✓ « résidu » de la métallurgie du zirconium (~2%)
- ✓ Métal dense (13,3 g/cm^3) et réfractaire (Tf = 2156 °C), médiocre conducteur (~20 W/m.K), eutectique Hf-Fe ~1300°C
- ✓ Isotopes fils eux-mêmes absorbants : efficacité décroît lentement
  - ➢ Ta : précipités, formation inhibée par Nb
- ✓ Structure hexagonale ➔ « croissance » (< 1%)
- ✓ Sous flux neutronique sous eau : formation d'hydrures, gonflement

  Couche d'oxydation passivante et résistante

  ➔ Utilisation préférable en barreaux non gainés
- ✓ Résistance à l'abrasion : additifs et couche de HfO_2
- ✓ Aval du cycle : peu actif (^{182}Ta)

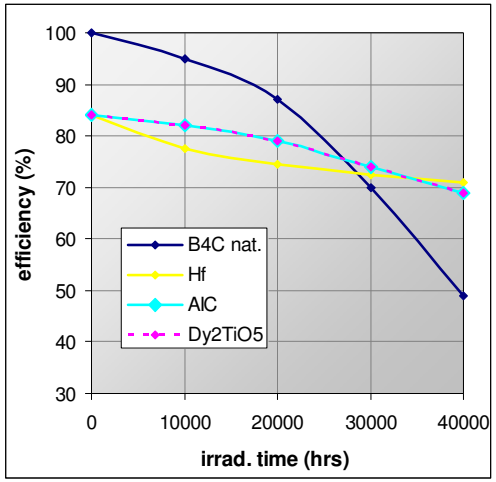
➔ peu d'obstacles à son utilisation en REL

AUTRES MATÉRIAUX (RÉACTEURS À EAU)

- Titanate de dysprosium Dy_2TiO_5
  - ✓ Utilisé dans les VVER (« criblage » systématique, et retour d'expérience sur 10 ans en VVER)
  - ✓ Très réfractaire (Tf = 1870 °C) et léger (densité fritté ~ 6,2 g/cm^3)
  - ✓ Terre rare (pas si rare)
  - ✓ Efficacité < Eu, Gd, Er → absorbant
    semblable à AIC et Hf
  - ✓ Inerte (gaine, eau)
  - ✓ Peu de dommage d'irradiation (tq. gonflement, fracturation)
  - ✓ Peu d'activité résiduelle (^{166}Ho et périodes courtes)

➔ peu d'obstacles à son utilisation en REL

Évolution de l'efficacité d'absorbants en VVER (spectre thermique)



- Bestiaire
  - ✓ ZrB_2, HfB_2
  - ✓ HfH
  - ✓ HfO_2
  - ✓ …

CONCLUSIONS

- La quasi-totalité des réacteurs actuels (Gen-II Gen-III) et envisagés (Gen-IV) utilisent/considèrent B4C, AIC et dans une moindre mesure Hf comme matériaux absorbants
- Ces choix résultent de considérations neutroniques et matériaux mais aussi « historico-économiques »
- Les durées de vie actuelles ou garanties des éléments absorbants (grappes, barres de contrôle, protections neutroniques) sont très inférieures aux ambitions initiales
- La place de AIC en particulier devrait être reconsidérée (économie, sûreté, aval du cycle)
- Le B4C semble incontournable en spectre rapide

Merci de votre attention



Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
Centre de Saclay | 91191 Gif-sur-Yvette Cedex
T. +33 (0)1 69 08 41 42 | F. +33 (0)1 69 08 71 30

Etablissement public à caractère industriel et commercial | RCS Paris B 775 685 019

DANS
DMN
SRMA
LA2M