

Etude par MEB et MET de carbone pyrolytique pour combustible nucléaire

C. Garcia, O. Dugne*

*Laboratoire des Composites Thermostructuraux (LCTS), UMR CNRS 5801,
3 allée de La Boétie, 33600 Pessac, France*

** Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) – DEN/VRH/DTEC/STCF/LMAC,
BP 111, 26702 Pierrelatte, France*

Depuis 2000, une coopération internationale a été relancée pour la définition et la mise au point de futurs réacteurs nucléaires dits de 4^{ème} génération. Le concept le plus avancé est le HTR, réacteur à haute température mettant en œuvre des neutrons thermiques. Ce regain d'intérêt a entraîné la relance des fabrications combustibles particulières et plus spécialement des dépôts d'enrobage de noyaux fissiles au CEA par CVD en lit fluidisé. Ces dépôts multicouches (Figure 1) sont composés successivement de :

- une couche de pyrocarbone poreux (buffer),
- une couche de pyrocarbone dense ou inner pyc (IPyC),
- une couche de SiC,
- une couche de pyrocarbone dense ou outer pyc (OPyC).

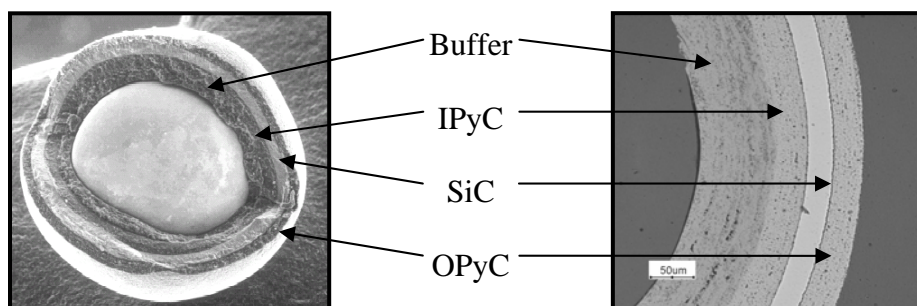


Figure 1 : combustible utilisé au sein des RHT

Cette séquence de multicouches a pour objet de permettre le confinement des produits de fission. Ce rôle est tenu principalement par le dépôt SiC tandis que les couches de carbone pyrolytique (PyC) contribuent à préserver mécaniquement la couche SiC. Le comportement thermomécanique sous irradiation est directement relié aux microstructures des différentes couches. A ce titre, le pyrocarbone doit être le plus isotrope possible dès la fabrication car sous irradiation, il devient anisotrope et provoque un fluage en compression du SiC jusqu'à la rupture.

La mise au point d'une technique de caractérisation locale submicronique voire nanométrique de l'anisotropie dont l'échelle dimensionnelle est cohérente avec les phénomènes d'irradiation, est indispensable pour valider les fabrications et tenter de comprendre par la suite, le comportement sous irradiation du PyC. La microscopie électronique à transmission, à l'aide de la diffraction électronique à aire sélectionnée (DEAS), peut permettre de remonter à l'anisotropie du PyC. Grâce au logiciel ANADIF (mis au point au sein du LCTS), il est possible de déterminer l'ouverture angulaire (OA) de l'anneau de diffraction 002 des clichés et ce, à des diaphragmes à dimensions croissantes. Cette mesure peut être reliée à la notion d'isotropie.

Cette approche a été appliquée aux nouvelles fabrications CEA afin de qualifier la qualité du pyrocarbone avant test sous irradiation. En plus de la DEAS, des examens approfondis en imagerie MET et MEB des couches (IPyC, OPyC) ont été réalisés en portant un effort particulier sur la représentativité des mesures par une approche statistique:

- La MET a permis de mettre en évidence la morphologie à l'échelle nanométrique du pyrocarbone (Figure 2a). De plus, il a été noté une différence notable entre les couches de IPyC et OPyC élaborées dans des conditions similaires. En effet, sur les différents lots testés, la couche de IPyC est systématiquement plus anisotrope que celle de OPyC. Ceci peut être dû à un recuit de la couche de IPyC induit par les opérations de dépôts successives de SiC et O-PyC.

- La MEB quant à elle, a permis d'accéder à la morphologie macroscopique des couches. Celles-ci présentent une certaine porosité et sont composées d'amas de sphéroïdes. La distribution de taille de ces sphéroïdes est très large, car elles présentent un écart-type de 100nm alors que leur taille moyenne est de l'ordre de 400nm. Ces sphéroïdes sont composées de deux parties à faciès différents (Figure 2b) : un cœur dense et une couronne plus « feuilletée », ceci permet de penser que leur synthèse s'effectue en deux temps, le cœur serait élaboré en phase homogène (gaz) puis une fois ce cœur déposé sur la bille, la couronne se formerait en phase inhomogène (solide-gaz).

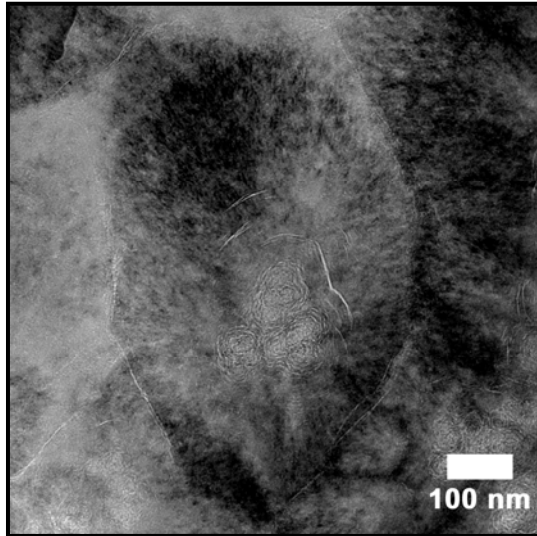
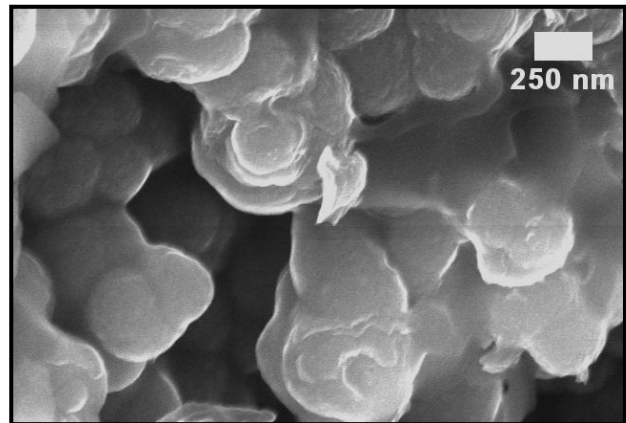


Figure 2 : a) Sphéroïde vue par MET



b) Sphéroïdes vue par MEB

Afin de comprendre et d'interpréter les phénomènes s'effectuant lors des dépôts, il a été élaborés différents lots à des vitesses de dépôt du PyC croissantes et donc d'anisotropies différentes. De plus deux types de substrat ont été utilisés : des billes et des substrats plans. La caractérisation systématique de ces dépôts permettra ainsi de relier les conditions d'élaborations utilisées à la morphologie et la structure du PyC observé et donc de remonter à l'influence des différents paramètres de dépôt.