

Etude expérimentale du système U-Mo-C

Matthieu Peniel

Institut des Sciences Chimiques de Rennes – équipe Chimie du Solide et Matériaux

matthieu.peniell@univ-rennes1.fr

☎ : (+33) 2 23 23 62 49

(+33) 6 28 03 81 63

1. Résumé

Dans le cadre du développement de systèmes nucléaires de quatrième génération, l'assemblage combustible pour les centrales à neutrons rapides et caloporteur gaz serait constitué de pastilles de monocarbure mixte d'uranium et plutonium (U,Pu)C, insérées dans des aiguilles en carbure de silicium SiC. Une feuille métallique (liner) serait insérée entre ces deux éléments, pour assurer le confinement des produits de fission gazeux, et pour améliorer la conductivité thermique. La température nominale de fonctionnement doit être de 1000°C avec la contrainte de résister à 2000°C de manière à simuler des conditions accidentelles. Le liner se doit donc d'être un métal réfractaire, tel que molybdène, tungstène, rhénium, ou niobium. En première approximation, le combustible peut être modélisé par le monocarbure d'uranium UC, qui permet de s'affranchir des contraintes liées à l'importante radioactivité du plutonium. Pour connaître les limites du système, notamment les conditions de fusion, il faut établir les relations de phases dans le système ternaire U-Mo-C, par l'évaluation des sections isothermes du diagramme de phases à la température de fonctionnement (1000°C) et en conditions incidentelles (1400°C) ainsi que les surfaces de liquidus.

Une étude bibliographique préalable a permis d'identifier plusieurs composés binaires : UC, UC₂, U₂C₃, U₂Mo, MoC, MoC_{0.7}, Mo₃C₂, et trois variétés allotropiques de Mo₂C [1-3]. A 1000°C, seules cinq de ces phases sont stables : UC [1], U₂C₃ [1], MoC [2], β'-Mo₂C et β''-Mo₂C [2]. Il existe également une solution solide γ-(U,Mo), jusqu'à 40 at% de molybdène. [3]. A 1400°C, on constate l'apparition de domaines liquides dans les zones riches en uranium des diagrammes U-C (jusqu'à 9 at% de carbone) et U-Mo (jusqu'à 33 at% de molybdène) [1-3], pour quatre phases binaires stables : UC [1], U₂C₃ [1] β-Mo₂C et β'-Mo₂C [2]. Deux composés ternaires sont répertoriés [4]: U₂Mo₂C₃ et UMoC₂. A l'issue de cette étude bibliographique, plusieurs questions demeurent, concernant la stabilité relative des phases UC₂ et U₂C₃ à basse température (<1500°C), la stœchiométrie exacte de la phase U₂Mo₂C₃, et l'existence éventuelle d'une troisième phase ternaire. Pour l'étude des surfaces de liquidus, des échantillons ont été préparés par fusion-solidification, pour différentes composition élémentaires. Ces échantillons ont été recuits à 1000°C dans des ampoules de silice scellées sous vide ou à 1400°C dans un four à induction. Pour chacun des échantillons, l'identification des phases a été effectuée par diffraction des rayons X, et leur répartition a été observée par microscopie électronique à balayage. Les échantillons ont également été étudiés par analyse thermique différentielle entre 100 et 1600°C, et par analyse thermique simple entre 800 et 2500°C.

Références

- [1] R. Benz, C. G. Hoffman, G.N. Rupert; High Temperature Sc., (1969) 1, 342-359.
- [2] T. Y. Velikanova, V.Z. Kublii, B.V. Khaenko, Sov. Powder Metall., (1988) 27, 891-896.
- [3] S.P. Garg, R.J. Ackermann, J. Nucl. Mater. (1977) 64, 265-274.
- [4] M. Ugajin, J. Abe, M. Kurihara, J. Nucl. Sci Tech. (1975) 12, 560-566.