

# Influence du procédé de fabrication sur les propriétés thermiques du buffer d'une particule de Réacteur Haute Température

Denis MARCHAND<sup>1\*</sup>, Denis ROCHAIS<sup>1</sup>

<sup>1</sup>CEA, DAM, Le Ripault, F-37260 Monts, France

\* (auteur correspondant : denis.marchand@cea.fr)

**Résumé** – Cet article présente les résultats obtenus lors de la caractérisation thermique de particules de combustible HTR (High Temperature Reactor) réalisées par microscopie infrarouge. L'observation d'un contraste thermique lié aux différences de propriétés de chaque couche montre ainsi l'avantage de la technique pour étudier l'influence du procédé de fabrication sur les propriétés thermiques de la couche de pyrocarbone poreux (buffer) en fonction de sa porosité. Connaissant la diffusivité thermique d'un des constituants, les écarts de phase mesurés entre ce constituant et les autres permettent de déterminer la diffusivité thermique de ces derniers.

## Nomenclature

$C_p$	capacité thermique, $J.kg^{-1}.K^{-1}$	$\Phi$	flux émis par rayonnement, $W$
$f$	fréquence de modulation, $Hz$	$\lambda$	conductivité thermique, $W.m^{-1}.K^{-1}$
$r$	distance au point de chauffage, $m$	$\rho$	masse volumique, $kg.m^{-3}$
$T$	température, $K$	$\sigma_{sb}$	constante de Stefan-Boltzmann $5,667.10^{-8} W.m^{-2}.K^{-4}$
$T_0$	température statique de l'échantillon, $K$	$\mu$	longueur de diffusion thermique, $m^{-1}$
$t$	temps, $s$	<i>Indices et exposants</i>	
<i>Symboles grecs</i>		$IR$	infrarouge
$\alpha$	diffusivité thermique, $m^2.s^{-1}$		
$\varepsilon$	émissivité de la surface		

## 1. Introduction

Le renouveau de l'énergie nucléaire dans le monde a conduit à une renaissance du développement des filières HTR (High Temperature Reactor - Generation III+) et V/HTR (Very High Temperature Reactor - Generation IV). L'innovation déterminante pour ces filières a été l'invention d'un combustible particulaire multicouche. Celui-ci est composé d'une bille d'environ 1 mm de diamètre constituée d'un noyau de matières fissiles et/ou fertiles, enrobés de matériaux réfractaires. Cette structure particulière de l'élément de base du combustible offre l'avantage d'assurer un confinement plus sûr des produits de fission durant le séjour en réacteur et de pouvoir utiliser des lois de comportement statistiques. Les particules qui font l'objet de la présente étude sont constituées d'un noyau fantôme de  $ZrO_2$  d'environ 500  $\mu m$  de diamètre (remplaçant le noyau de matière fissile et/ou fertile d' $UO_2$ ), d'une couche de pyrocarbone (PyC) poreux (appelée Buffer,  $\sim 90 \mu m$  d'épaisseur), d'une couche pyrocarbone dense (IPyC,  $\sim 35 \mu m$  d'épaisseur), d'une couche de carbure de silicium (SiC,  $\sim 30 \mu m$  d'épaisseur) et à nouveau d'une couche pyrocarbone dense (OPyC,  $\sim 35 \mu m$  d'épaisseur) [1].

La faible épaisseur des couches de la particule et leur structure plus ou moins poreuse obligent à employer une technique de caractérisation suffisamment résolue pour pouvoir effectuer une mesure locale qui ait un sens. L'identification des propriétés thermiques in situ au sein d'un matériau est rendue possible avec les techniques dites photothermiques [1, 2, 3].

L'objet de cet article est de présenter la méthodologie appliquée à la caractérisation du buffer des particules HTR en fonction des paramètres d'élaboration de ces dernières. Cette étude a été réalisée avec un Microscope InfraRouge (MIR) développé au laboratoire. L'analyse des images thermiques obtenues sur des billes issues de lots de fabrication différents permet de déterminer l'évolution de la diffusivité thermique effective de la couche de buffer en fonction de la variation de sa porosité.

## 2. Technique de mesure de diffusivité thermique par microscopie photothermique

Afin de caractériser la diffusivité thermique, nous nous intéressons à la mesure et à l'analyse de l'augmentation périodique de la température de surface d'un matériau, induite par l'absorption d'un faisceau laser modulé en intensité (faisceau pompe). Cette technique non-intrusive a permis de développer un dispositif (MIR) autour des phénomènes engendrés par l'échauffement local du matériau, en mesurant la partie modulée du rayonnement infrarouge émis par la surface. Le signal obtenu est proportionnel à la variation locale de température. Voyons tout d'abord comment l'exploitation de ce phénomène, appelé onde thermique, permet de mesurer la diffusivité thermique d'un matériau.

Pour extraire la diffusivité thermique des mesures réalisées, une analyse théorique de l'échauffement induit par le faisceau pompe est nécessaire. Considérons le cas simple d'un matériau semi-infini homogène isotrope thermiquement chauffé par une source de chaleur périodique et ponctuelle  $Q \cdot \cos(2\pi ft)$ . L'expression de l'augmentation périodique de la température  $\delta T$  à une distance  $r$  du faisceau de chauffage s'écrit alors [2] :

$$\delta T(r, t) = \frac{Q}{4\pi\lambda r} \cos\left(2\pi ft - \frac{r}{\mu}\right) \exp\left(-\frac{r}{\mu}\right) \quad (1)$$

où :

$$\mu = \sqrt{\frac{\alpha}{\pi f}} \quad \text{et} \quad \alpha = \frac{\lambda}{\rho C_p} \quad (2)$$

L'équation (1) décrit une onde qui s'amortit d'autant plus fortement que la fréquence augmente. En choisissant judicieusement la fréquence d'excitation, nous pouvons donc choisir une échelle de caractérisation compatible avec les dimensions des différents constituants d'un matériau multi-échelles (ou multi-matériaux).

De plus, on peut également noter que la phase de cette onde thermique décroît linéairement en fonction de la distance  $r$  à la source de chaleur avec une pente égale à  $-\mu^{-1}$ . La mesure de la phase du signal permet donc d'identifier la diffusivité thermique en passant par un ajustement linéaire utilisant l'équation (2). Toutefois, des effets de convolution, liés aux distributions énergétiques des faisceaux pompe et sonde, peuvent limiter la résolution spatiale de la mesure et doivent être pris en compte pour estimer précisément la diffusivité thermique.

## 3. Principe de la microscopie infrarouge et dispositif expérimental

Cette technique de microscopie infrarouge (détaillée dans [1-3]) permet de mesurer, à l'échelle de quelques dizaines à centaines de micromètres, la partie modulée du rayonnement infrarouge émis par la surface d'un échantillon chauffé par un faisceau pompe. Le dispositif est schématisé sur la Figure 1. Le rayonnement est recueilli par un objectif Cassegrain dont le plan focal contient la surface de l'échantillon. Le rayonnement infrarouge est ensuite focalisé sur la zone sensible d'un détecteur HgCdTe au moyen d'une lentille ZnSe. Le positionnement de la lentille par rapport à l'objectif Cassegrain fixe le grandissement du dispositif qui, dans la

configuration actuelle, est d'environ  $\times 15$ . Le détecteur HgCdTe est fixé sur un ensemble de platines de translations verticale et horizontale permettant de cartographier la zone d'émission infrarouge. Le signal issu du détecteur est amplifié à l'aide d'un préamplificateur puis envoyé à une détection synchrone pour en extraire la composante modulée. Le dispositif est également doté d'un système d'éclairage et d'une caméra CCD pour visualiser et faciliter le positionnement de l'échantillon.

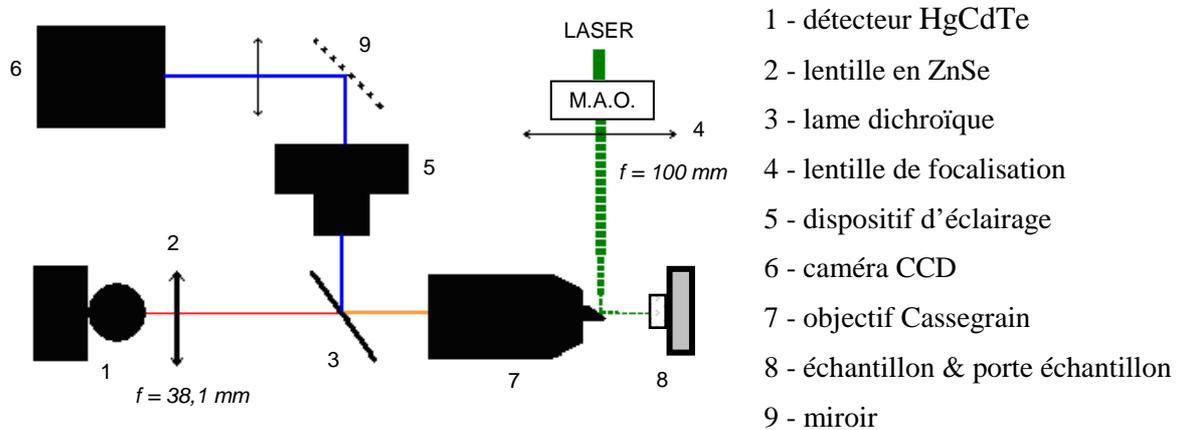


Figure 1 : Dispositif expérimental de microscopie infrarouge

Dans le cas d'un échauffement faible de la surface de l'échantillon, l'expression linéarisée du flux émis par rayonnement s'écrit de la manière suivante [3] :

$$\Phi_{IR}(r, t) = 4\sigma_{sb} \epsilon T_c^3 \delta T(r, t) \quad (5)$$

L'analyse de la composante transitoire de cet échauffement, donnée par l'équation (1), permet d'identifier la diffusivité thermique de l'échantillon au moyen de modèles prenant en compte les effets de convolution, d'anisotropie thermique et/ou de structure.

La résolution de ce dispositif est liée aux dimensions de la source de chaleur (diamètre = 40  $\mu\text{m}$ ) et à celles du détecteur, et aux phénomènes de diffraction dus à l'objectif Cassegrain.

## 4. Résultats

Des images du signal thermique sont réalisées en déplaçant l'échantillon dans le plan focal de l'objectif Cassegrain au moyen de deux platines de translation verticale et horizontale et en fixant la position relative du faisceau pompe et du détecteur HgCdTe. Ce type d'essai permet d'obtenir une information sur le contraste thermique existant entre les différentes couches de la particule et de vérifier aussi les valeurs de diffusivité thermique déjà déterminées pour chaque couche par photoréflectance [1, 4].

Dans le cas d'un matériau hétérogène, nous observons un contraste thermique lié aux différences de propriétés thermiques des constituants de ce matériau. Si la diffusivité thermique d'un des constituants est connue, les écarts de phase mesurés entre ce constituant et les autres peuvent nous permettre de déterminer la diffusivité thermique de ces derniers. Cependant, comme nous le verrons par la suite, une des difficultés réside dans la bonne maîtrise de la distance pompe/sonde.

Les billes de l'étude possèdent toutes un noyau de zirconium qui a préalablement subi un traitement thermique avant le dépôt par CVD des différentes couches de pyrocarbone et de SiC. Ce noyau est considéré comme stable et dense. Les trois billes que nous avons caractérisées sont issues des lots suivants :

- 504 : noyau en zircone + buffer (épaisseur ~ 95  $\mu\text{m}$ ),
- 505 : noyau en zircone + buffer (épaisseur ~ 83  $\mu\text{m}$ ) + IPyC (épaisseur ~ 40  $\mu\text{m}$ ),
- 607 : noyau en zircone + buffer + IPyC + SiC + OPyC.

La zircone étant semi-transparente à la longueur d'onde du faisceau de chauffage, les trois échantillons ont été recouverts d'un dépôt de Titane de 150 nm d'épaisseur permettant la caractérisation du noyau. De plus, ce revêtement assure une absorption de l'énergie lumineuse en surface, homogène pour toutes les couches.

Dans un premier temps, la détermination de la diffusivité thermique des noyaux de zircone de chaque bille a été menée. Plusieurs profils à différentes fréquences d'excitation réalisés et exploités via l'ajustement du modèle théorique [1, 2] permettent d'estimer une diffusivité thermique moyenne du noyau de  $(9,4 \pm 0,5) 10^{-7} \text{m}^2.\text{s}^{-1}$ .

Dans un second temps, des images thermiques ont été réalisées pour une distance pompe/sonde nulle comme le montre par exemple sur la Figure 2 celles obtenues à une fréquence de 14 Hz à la surface des billes issues respectivement des lots 504, 505 et 607. Le choix de la superposition de l'excitation et de la détection pour ces premières images permet de s'affranchir des effets liés à l'anisotropie thermique et à la microstructure des couches sur la propagation thermique ; seules seront vues les variations de phase dues (i) aux passages des interfaces et (ii) au changement de nature du milieu sondé.

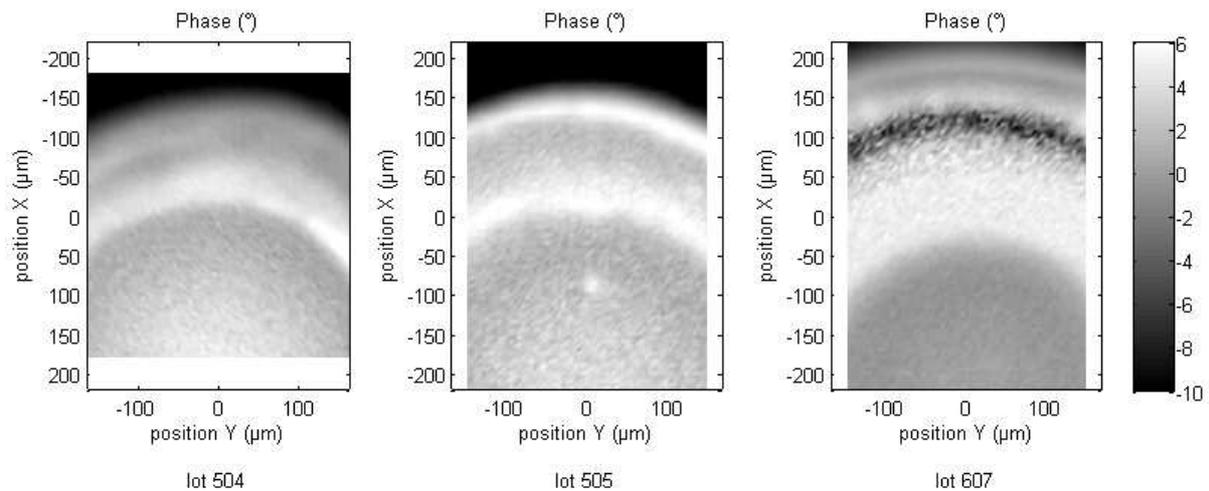


Figure 2 : Images thermiques de phase obtenues à une fréquence de 14 Hz pour chacune des billes issues des trois lots

Nous constatons sur ces trois images que le contraste thermique observé révèle bien les différentes couches et les effets d'interface. Si maintenant, nous extrayons de chaque image de phase un profil selon une direction radiale et que nous les superposons tous les trois, nous obtenons la Figure 3.

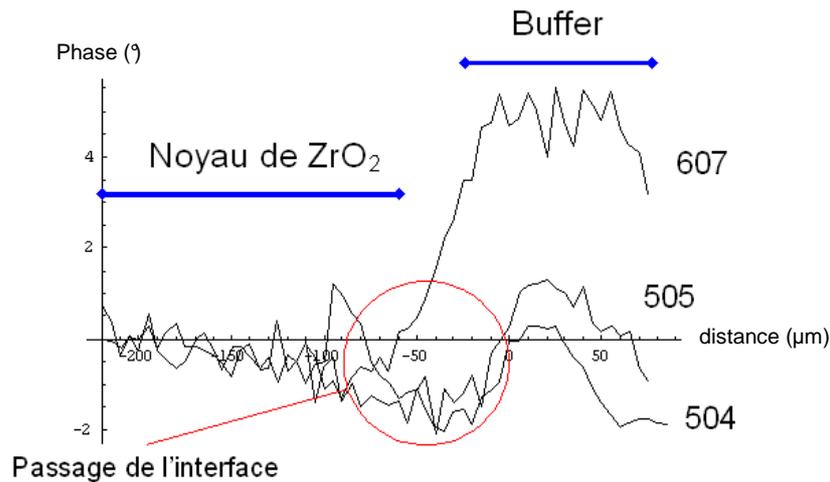


Figure 3 : Superposition de trois profils radiaux extraits des images de phase de la Figure 2

Le niveau de référence pour chacune de ces courbes ( $0^\circ$  de déphasage) correspond au noyau de zircon. Le passage des interfaces se traduit par un déphasage négatif. Cela signifie que la diffusivité thermique diminue car nous sommes en présence d'une barrière thermique. La progression sur chaque buffer se traduit par un déphasage positif pour les lots 505 et 607 et quasi nul pour le lot 504. Cela signifie que la diffusivité thermique du buffer des lots 505 et 607 est plus élevée que la zircon alors que celle du lot 504 est du même ordre de grandeur. Cette évolution est corrélée à la variation de porosité mesurée par adsorption d'azote, porosimétrie à intrusion de mercure et microscopie optique. Ces mesures réalisées sur les différents lots donnaient respectivement des valeurs de porosité du buffer de 41 %, de 34 % et de 17 % pour les lots 504, 505 et 607. L'augmentation de la diffusivité thermique suit bien cette variation de porosité correspondant à la densification croissante du buffer des lots testés.

Pour confirmer ces premières observations, des simulations réalisées en augmentant la diffusivité thermique d'un matériau homogène à partir d'une valeur de  $9.10^{-7} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$  correspondant à la zircon sont présentées sur la Figure 4.

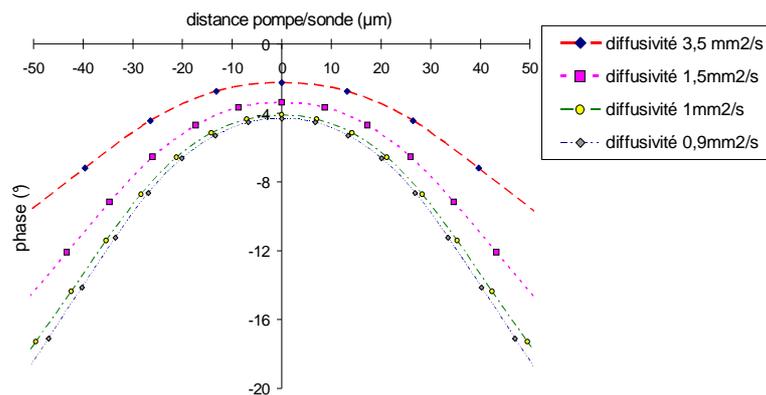


Figure 4 : Simulations du déphasage en fonction de la distance pompe/sonde

Figure 4, on note que le déphasage en  $x = 0$  (pompe/sonde confondues) augmente bien de quelques degrés si la diffusivité thermique croît elle aussi. On constate aussi que le contraste thermique augmente lorsque la distance pompe/sonde augmente.

De nouvelles images ont donc été réalisées sur chaque bille à une fréquence de 14 Hz en choisissant une distance pompe/sonde égale à  $50 \mu\text{m}$ . De chacune de ces images, nous avons extrait un profil parallèle à la direction radiale et présenté leur superposition sur la Figure 5.

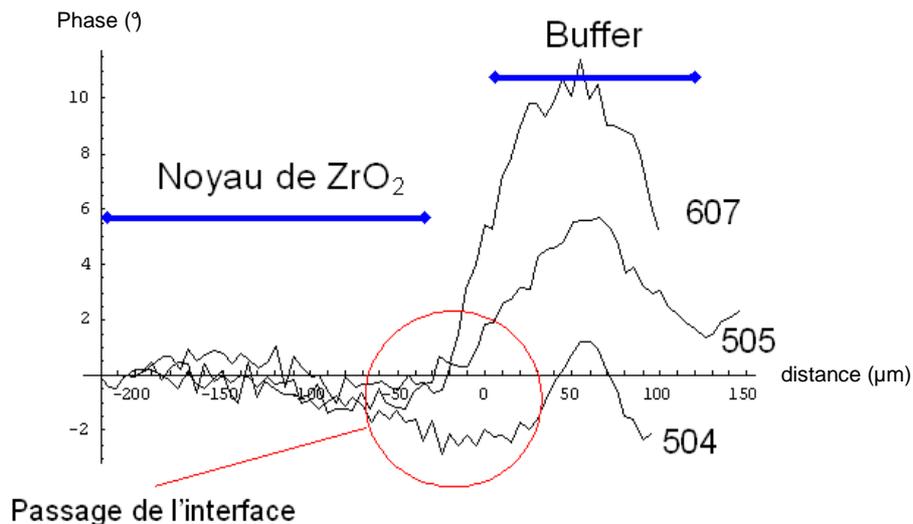


Figure 5 : Profils radiaux extraits des images de phase pour une distance pompe/sonde de 50  $\mu\text{m}$

Comme attendu, le contraste thermique a été amplifié pour les billes issues des lots 505 et 607, et est resté identique pour le 504. Une simple comparaison des Figure 3, 4 et 5, nous permet de donner un ordre de grandeur des diffusivités thermiques radiales des buffers de chaque lot :  $10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  pour le lot 504,  $1,5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  pour le lot 505 et  $3,5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  pour le lot 607. Cette dernière valeur peut être rapprochée de la valeur mesurée sur les buffers épais testés en 2006 [1], qualifiés de denses, et qui valait  $4,2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ .

Ces premières estimations confirment bien la corrélation entre l'évolution de la diffusivité thermique du buffer et son taux de porosité.

## 5. Conclusion

Les images thermiques réalisées avec le MIR, nous ont permis d'estimer la diffusivité thermique effective du Buffer et de montrer l'impact de la porosité du milieu qui évolue en fonction des paramètres d'élaboration. Pour parvenir à une identification précise de la diffusivité thermique du buffer, il faut réussir à maîtriser la distance pompe/sonde sur le MIR qui peut permettre d'obtenir un contraste thermique optimal. De plus, ces images thermiques peuvent être réalisées en fonction de la température. Nous envisageons donc de mesurer la diffusivité thermique effective du buffer, *in situ*, en intégrant l'effet sur la microstructure de la dilatation thermique, ce qui n'est pas possible dans une démarche de caractérisation du squelette du buffer associée à une simulation numérique réalisée à partir d'une tomographie X comme présentée dans [1, 4]. Enfin, des modèles théoriques spécifiques, prenant en compte plusieurs milieux différents séparés par des interfaces doivent être mis en œuvre pour décrire l'évolution des profils des Figure 3 et 5. Ces modèles, développés dans [2], vont donc être prochainement intégrés dans notre procédure d'identification de la diffusivité thermique.

## Références

- [1] D. Rochais, G. Le Meur, V. Basini and G. Domingues, *Nucl Eng Des* 238 (11) 3047-3059 (2008) doi:10.1016/J.nucengdes.2007.11.205.
- [2] J. Jumel, Thèse de doctorat, ENS Cachan (2003).
- [3] J.F. Bisson, Thèse de doctorat à l'Université Paris 6 (1999).
- [4] D. Marchand and D. Rochais, *Proc. ICPPP15* (Leuven, Belgium, 19-23 Jul. 2009)