HAL
open science

Comportement en conditions "extrêmes" d'un gainage de combustible nucléaire base zirconium revêtu de chrome

A. Wu, J.-C. Brachet, J. Ribis, E. Clouet, A. Barbu

▶ **To cite this version:**

A. Wu, J.-C. Brachet, J. Ribis, E. Clouet, A. Barbu. Comportement en conditions "extrêmes" d'un gainage de combustible nucléaire base zirconium revêtu de chrome. Journées annuelles de la SF2M, Oct 2015, Paris, France. hal-02445703

HAL Id: hal-02445703

https://cea.hal.science/hal-02445703

Submitted on 20 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

Comportement en conditions « extrêmes » d'un gainage de combustible nucléaire base zirconium revêtu de chrome

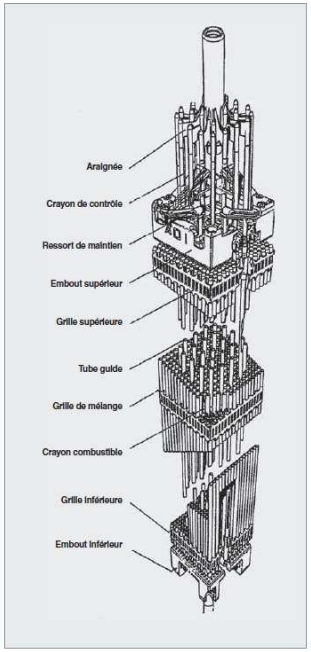
WU Alexia[1], BRACHET Jean-Christophe[1], RIBIS Joel[1], CLOUET Emmanuel[2], BARBU Alain[2] et al.

1 CEA Saclay DEN/ DMN/SRMA/LA2M

2 CEA Saclay DEN/ DMN/SRMP

Journées annuelles de la SF2M
27 Octobre 2015

CONTEXTE – GAINE DE COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE (REP)



Gaines du combustible nucléaire : matériaux soumis à des **conditions extrêmes**

- En conditions nominales : irradiation, corrosion, chargement mécanique
- En conditions accidentelles hypothétiques : oxydation accélérée haute température (HT)

  => fragilisation, ballonnement/rupture

Gaines de combustible en **alliage de zirconium** (composition en % massique):

	Sn	Cr	Nb	Fe	O
Zy-4	1,5	0.1	-	0,2	0,1

>98% de Zr

➢ Développement d'un concept de gaine base Zr revêtue au chrome (collab. UTBM - brevet CEA)

- Plus résistante à l'oxydation vapeur HT (quelques minutes à 1200℃)
- Comportement sous irradiation à qualifier (350℃, > 10 dpa en fin de vie)

GAINES BASE Zr REVÊTUE Cr

1) Travaux CEA: Comportement vis-à-vis de l'oxydation en conditions extrêmes accidentelles (jusqu'à ~1200℃)

2) Travaux de thèse: Microstructures avant et après irradiation

GAINES BASE Zr REVÊTUE Cr

1) Travaux CEA: Comportement vis-à-vis de l'oxydation en conditions extrêmes accidentelles (jusqu'à ~1200℃)

2) Travaux de thèse: Caractérisations avant et après irradiation

CONTEXTE – ACCIDENT DE PERTE DE RÉFRIGÉRANT PRIMAIRE (APRP)

Gaines de combustible REP en conditions accidentelles hypothétiques de type APRP :

- Elévation de la température (1200℃ maximum: critère de sureté)
- Milieu vapeur
- Forte oxydation (voir hydruration) de la gaine

⇒ **Fragilisation et risque de perte d'intégrité**
⇒ **Production de H_2 gazeux (risque d'explosion)**

Amélioration grâce à un concept de gaine de Zr revêtue Cr

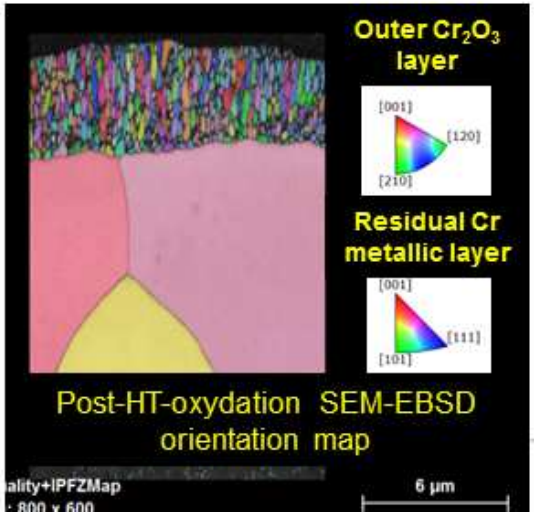
- Intérêt revêtement Cr : Délai de grâce et marge de température additionnelle à HT
- Procédé de dépôt très énergétique, dérivé du PVD

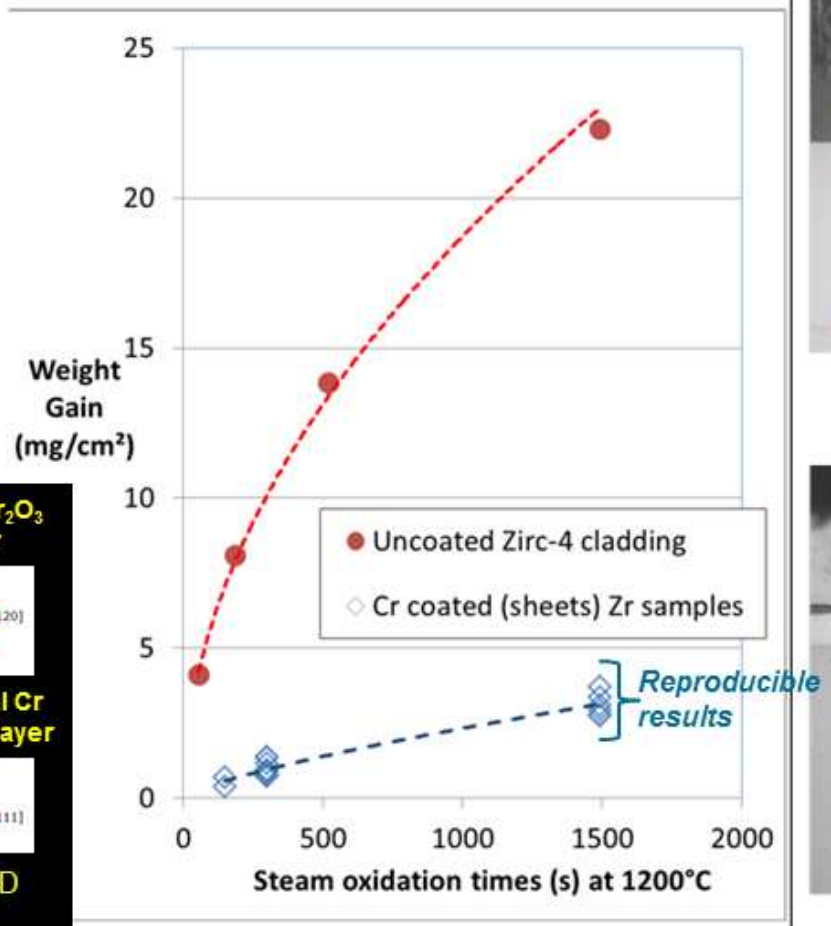
GAINE REVÊTUE (NON IRRADIÉE) – RÉSISTANCE À L'OXYDATION EN CONDITIONS EXTRÊMES

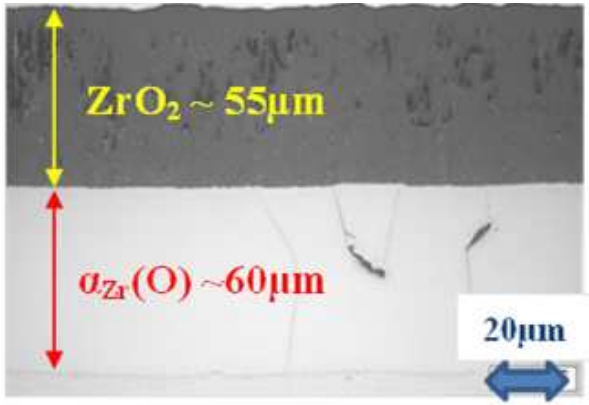
Rappel des travaux au CEA:

En conditions accidentelles hypothétiques (oxydation vapeur 1200°C)

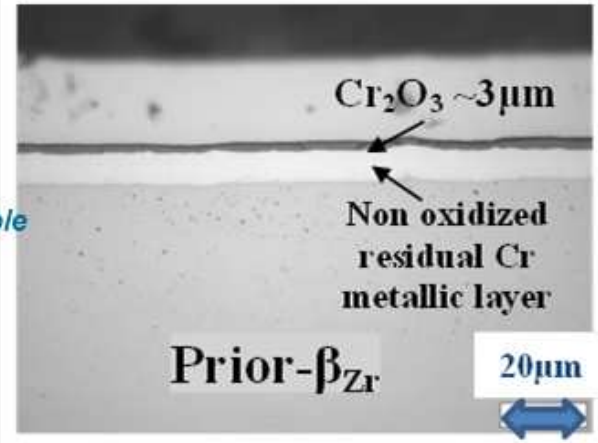
1200°C







(a) Uncoated Zirc-4 after steam oxidation for 300s at 1200°C



(b) Cr coated Zirc-4 after steam oxidation for 300s at 1200°C

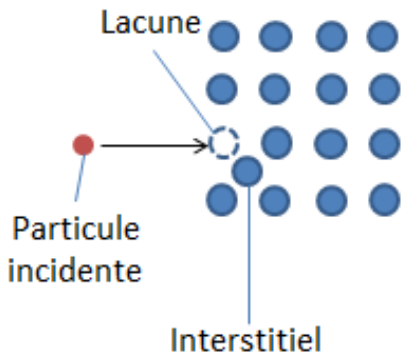
J.C. BRACHET et al., On-going studies at CEA on chromium coated zirconium based nuclear fuel claddings for enhanced Accident Tolerant LWRs Fuel:Topfuel Rector Fuel Performance, Zurich, Switzerland –Sept. 13 -17 2015

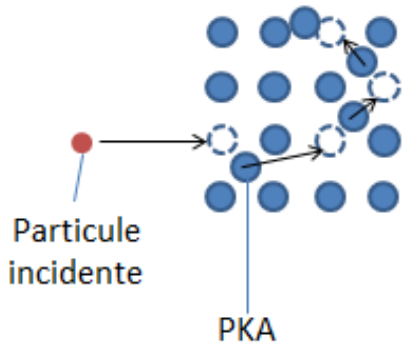
GAINES BASE Zr REVÊTUE Cr

1) Travaux CEA: Comportement vis-à-vis de l'oxydation en conditions extrêmes accidentelles (jusqu'à ~1200℃)

2) Travaux de thèse: Caractérisations avant et après irradiation

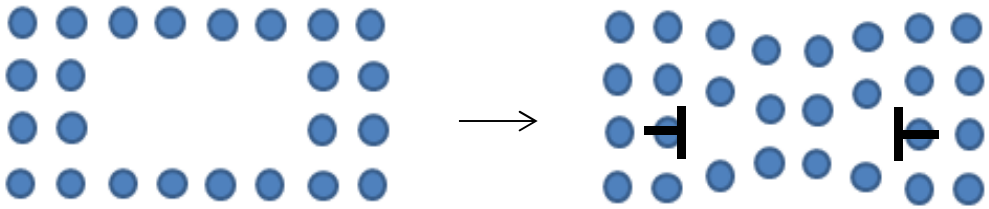
Irradiation neutrons → création de défauts





- Cascade de défauts ponctuels
- Conséquence potentielle : augmentation de la mobilité des atomes (**diffusion accélérée assistée par l'irradiation**)

Par diffusion de défauts ponctuels → boucles de dislocation



- Exemple d'une boucle lacunaire
- Conséquence macroscopique : **durcissement, diminution de la ductilité, fragilisation potentielle**

- Simulation de l'irradiation aux neutrons par des ions

COMPORTEMENT SOUS IRRADIATION :PROBLÉMATIQUES

Chrome hors irradiation:

- Structure cubique centré
- Température de transition ductile/fragile: 20℃ < TT DF < 200℃ [1] [2]

Sous irradiation (T <400℃)

Chrome:

- Création et évolution des défauts (boucles d'irradiation)
- Augmentation de la température de transition ductile/ fragile?
  - **Durcissement → fragilisation?**

Interface:

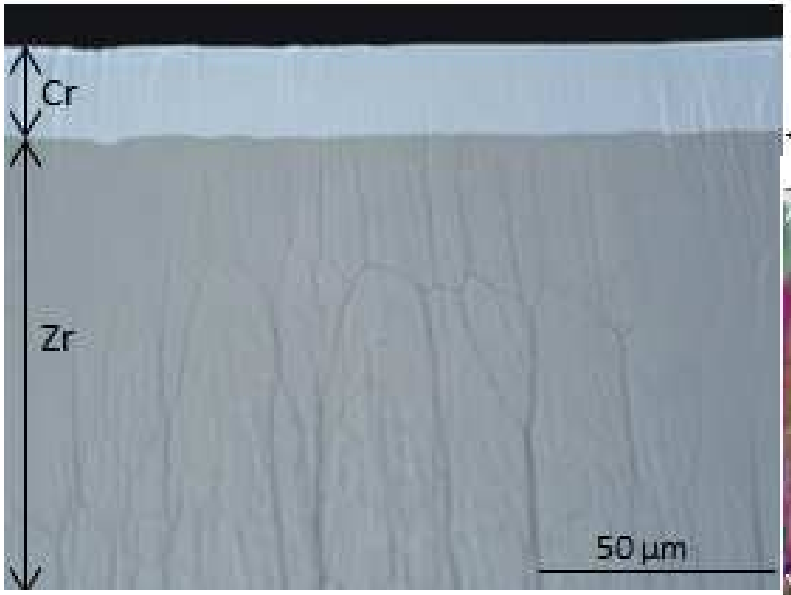
- Stabilités des phases formées sous irradiation ? (amorphisation, dissolution, reprécipitation…)
- Possible diffusion accélérée de Cr dans le substrat base Zr ?
  - **Desquamation? « Consommation » du revêtement?**

[1] C.W. Weaver, *Irradiation and the ductility of chromium*, Scripta Metallurgica ,Vol. 2, 463-466, (1968)

[2] V. Chakin * , V. Kazakov, Yu. Goncharenko, Z. Ostrovsky, *Formation of the a-phase in Cr-Fe alloys under irradiation*, Journal of Nuclear Materials 233-237 (1996) 573-576

MICROSTRUCTURE AVANT IRRADIATION

Observation du revêtement :



Micrographie en microscopie optique d'une plaquette de Zy-4 revêtue de chrome (S. Abbes)

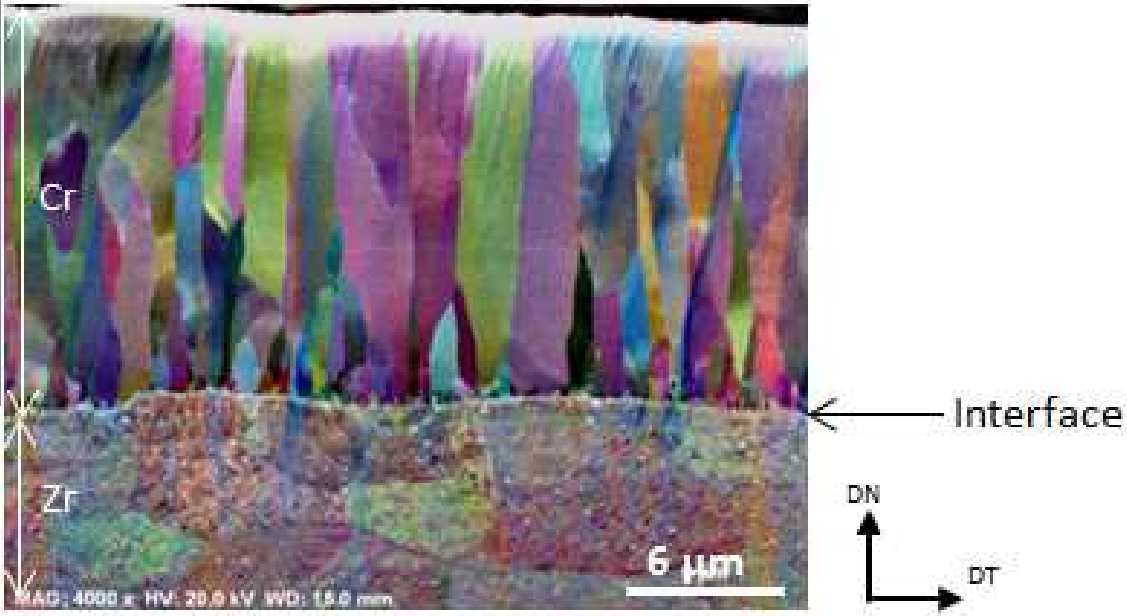
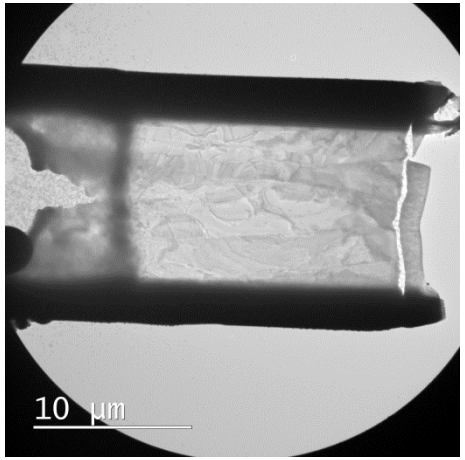


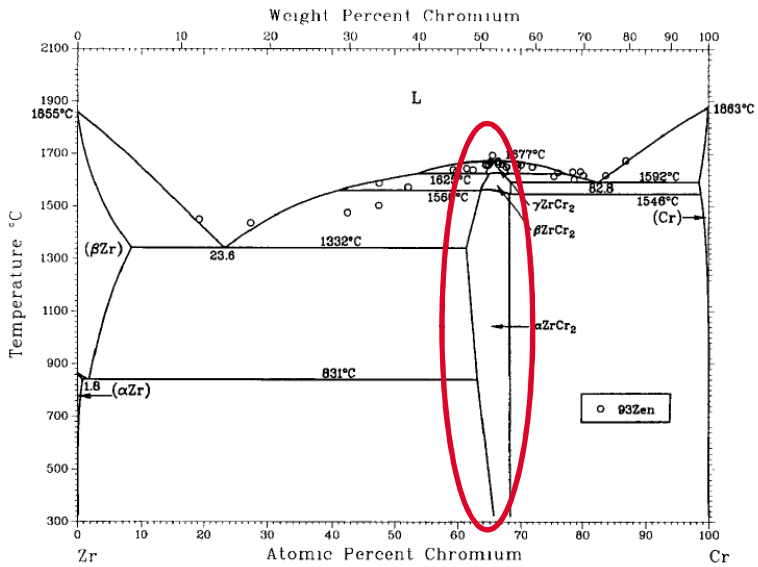
Image en électrons ante diffusés (FSE) dans le plan (DN, DT) d'un revêtement de chrome sur Zy-4 (E. Rouesne)

- Grains colonnaires de chrome
- Observation de grains nanométriques à l'interface
- Texture cristalline plus ou moins marquée

CARACTÉRISATIONS MET - INTERFACE SUR LAME FIB



Lame FIB (B. Arnal)



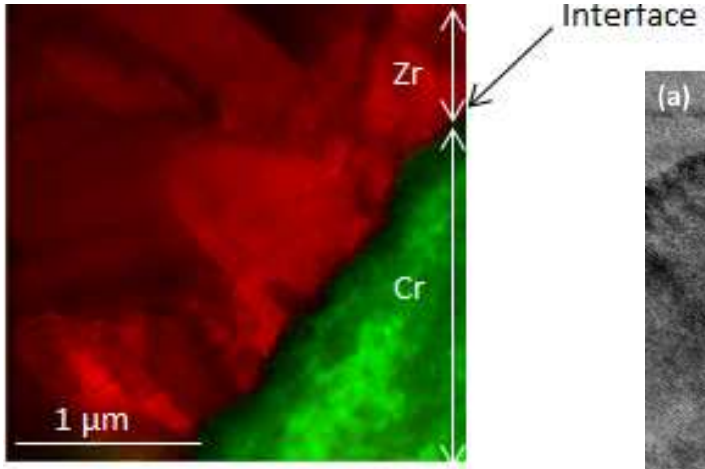
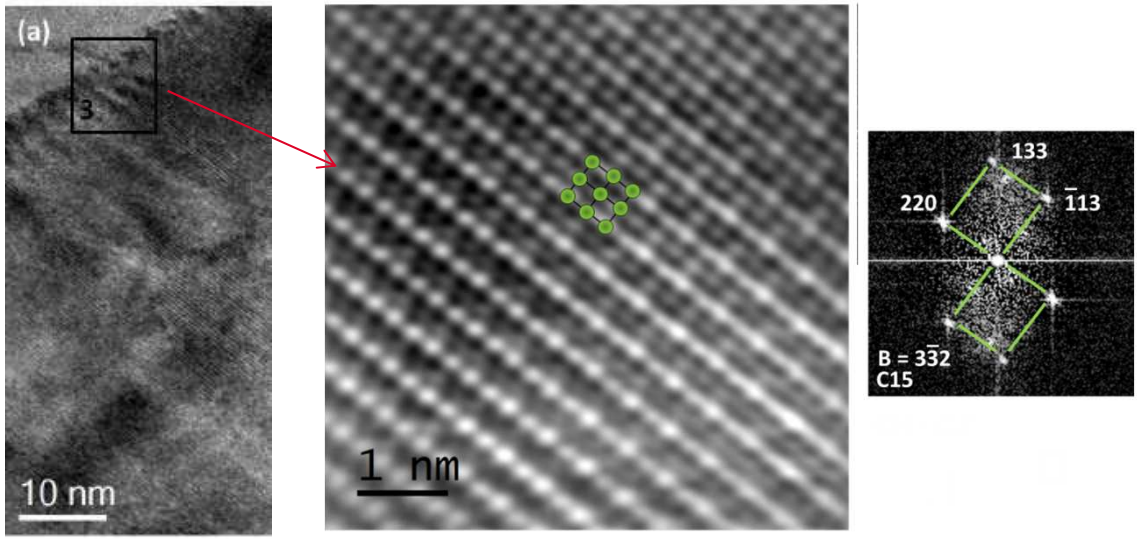


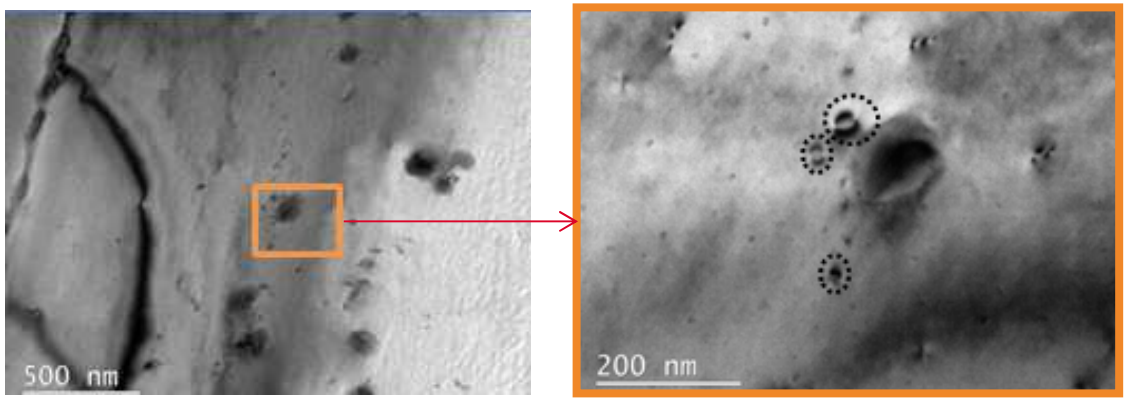
Image MET de l'interface

- Pas de défauts (cavités, décollement..), interface propre



- Existence de phases à l'interface $ZrCr_2$ (Travail de J. Ribis)

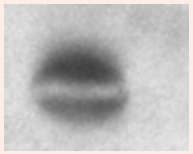
Observations MET du chrome sur lame FIB



Images MET à différents grandissements d'une lame FIB d'une plaquette Zy-4 revêtue de chrome non irradié

- Observation de **boucles de dislocation** dans le chrome non irradié
- *Probablement induites par le procédé de dépôt hautement énergétique*

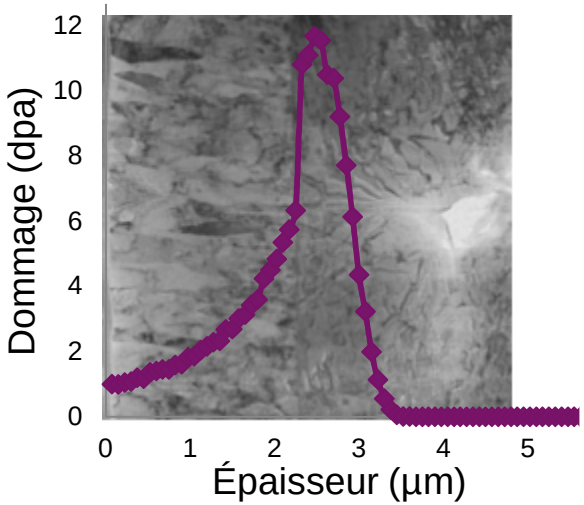
Détermination du plan d'habitat des boucles: **famille de plans {001}**
Détermination du **vecteur de Burgers: (a/2)<111>**
Détermination de la nature par la méthode du contraste interne/ externe: **lacunaire**

Vecteur de Bragg	Vecteur de diffraction	Contraste de la boucle	
s>0	+g	interne	
s<0	+g	externe	

COMPORTEMENT SOUS IRRADIATION : ETUDE EN COURS

- Irradiations aux ions sur l'accélérateur « Jannus » (CEA/DEN/DMN/SRMP)
  - Ions Kr^{8+}
  - Température de 400℃
  - Fluence comprise entre 1.10^{11} ions.cm^{-2} et 3.10^{11} ions.cm^{-2}
  - Temps d'irradiation compris entre 6 heures et 12 heures
  - Dose totale ~ 5.10^{15} ions.cm^{-2} [126]

- Simulations SRIM



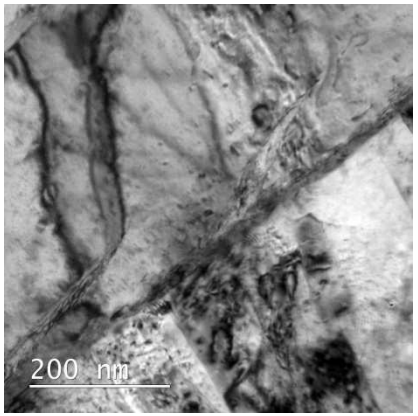


Image MET Interface irradiée

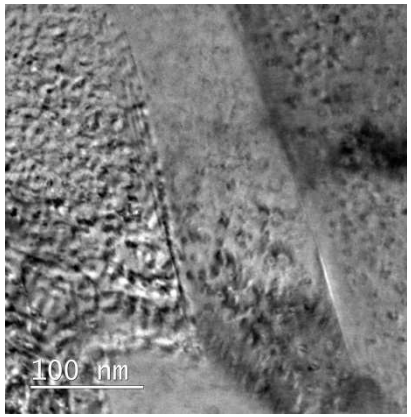


Image MET chrome irradié

<u>En cours :</u>

- Etude MET du chrome et de l'interface
- DRX pour évaluation des modifications avant/après irradiation
- Nanodureté pour étude du durcissement

CONCLUSIONS - PERSPECTIVES

- Gaines du combustible nucléaire: matériau soumis à des conditions extrêmes en conditions nominales et hypothétiques accidentelles (APRP)
  - Irradiation (T < 400℃, ~10 dpa…)
  - Oxydation vapeur HT (~1200℃)
- Gaines en alliages de zirconium revêtues de Cr :
  - En conditions nominales (350℃): amélioration de la résist ance à la corrosion
  - En conditions accidentelles (jusqu'à ~1300℃): meilleure résistance à l'oxydation
- Comportement sous irradiation?
  - Simulation de l'irradiation neutronique par irradiation aux ions
  - Observation avant/après irradiation
  - Caractérisations post-irradiation en cours
- Perspectives:
  - Etude in-situ en température et sous irradiation (MET)
  - Etude in-situ de l'endommagement du revêtement avant/ après irradiation aux ions (MEB)
  - A plus long terme: comparaison avec irradiations aux neutrons (irradiations neutroniques représentatives REP - en cours et en projet à l'international)

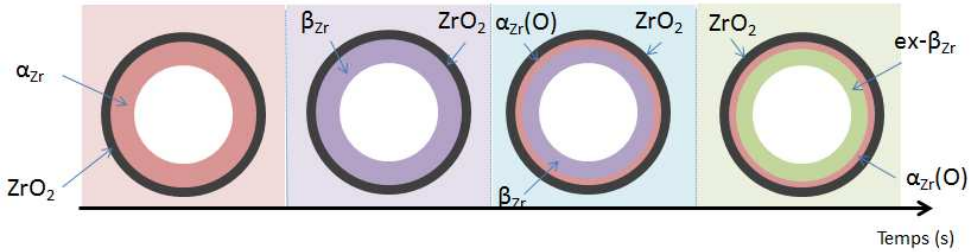
Back-up slides

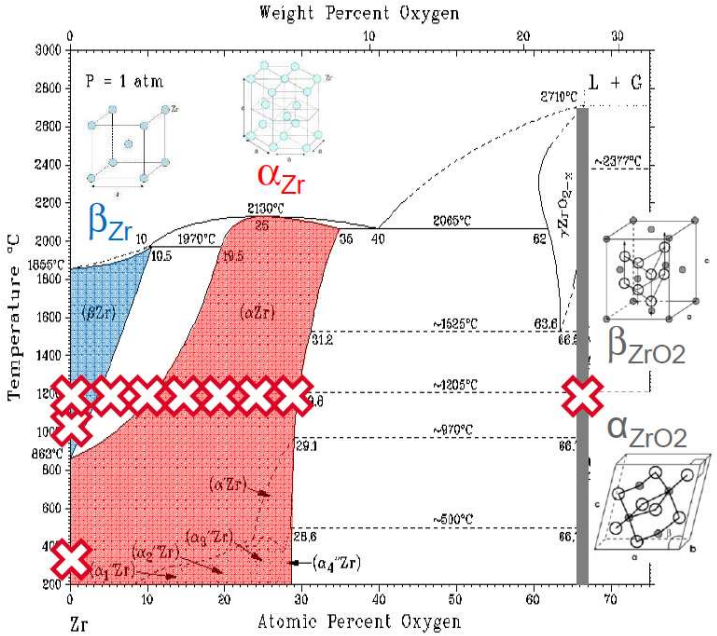
CONTEXTE – ACCIDENT DE PERTE DE RÉFRIGÉRANT PRIMAIRE (APRP)

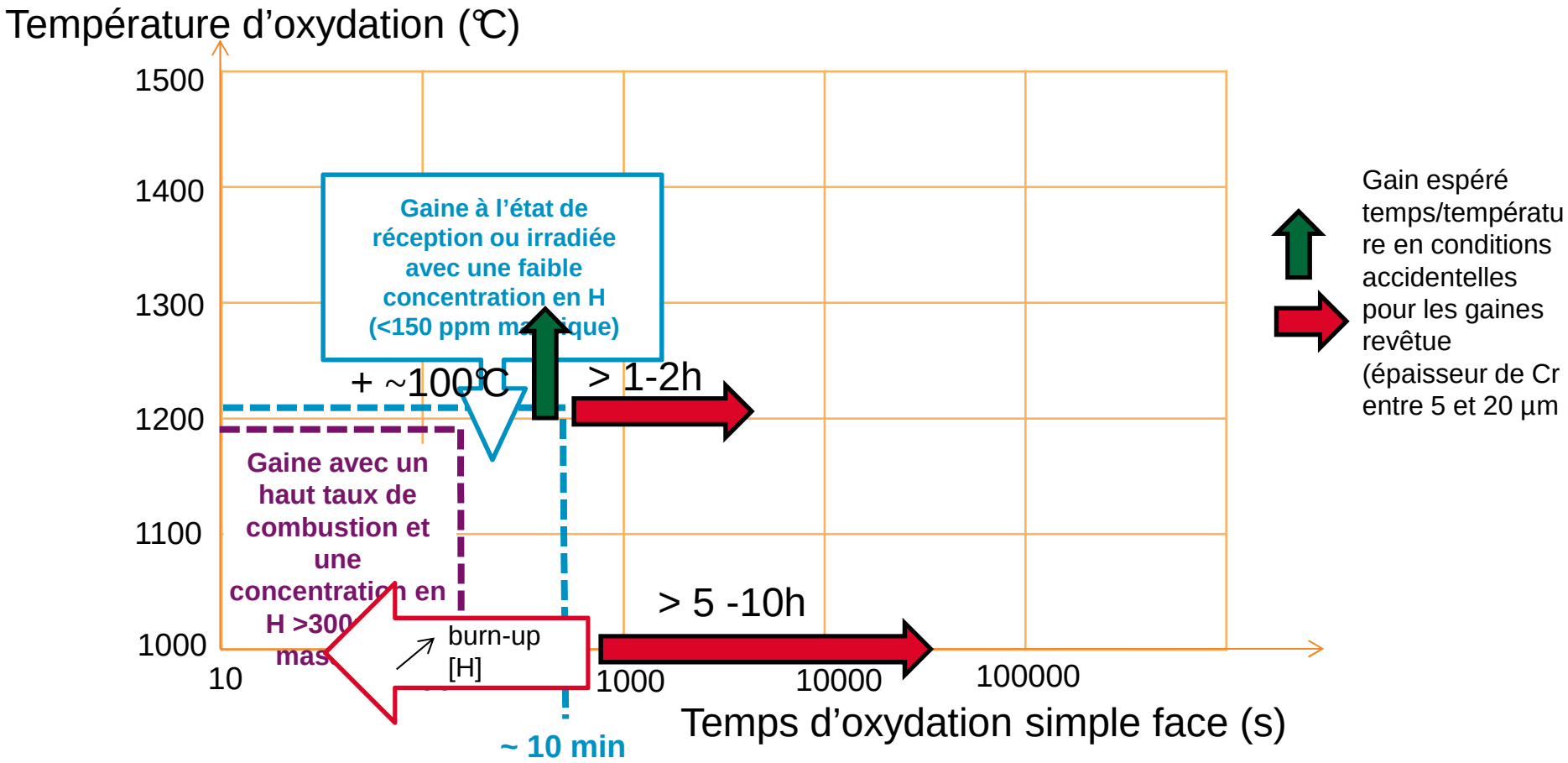
Scénario APRP:

- Brèche circuit primaire
- Dépressurisation du circuit primaire
- Vaporisation du caloporteur (eau)
- Echauffement au niveau des gaines (800℃ <T <1200℃)

➢ induit de profondes modifications métallurgiques de la gaine base Zr et donc de ses propriétés mécaniques





COMPORTEMENT EN CONDITIONS « APRP » - OXYDATION (VAPEUR) À HAUTE TEMPÉRATURE

Limites en conditions accidentelles des gaines de référence (non revêtues) et marges potentielles temps-température additionnelles liées à la mise en œuvre des gaines revêtues Cr :