



Fluage en flexion du dioxyde d'uranium après irradiation aux ions

Christian Colin, Michel Boussuge, Michel Beauvy

► **To cite this version:**

Christian Colin, Michel Boussuge, Michel Beauvy. Fluage en flexion du dioxyde d'uranium après irradiation aux ions. Matériaux 2006, 2006, Dijon, France. 6 p., 2006. <hal-00144395>

HAL Id: hal-00144395

<https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00144395>

Submitted on 3 May 2007

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.

Fluage en flexion du dioxyde d'uranium après irradiation aux ions

Christian Colin^a, Michel Boussuge^b, Michel Beauvy^c

^a CEA Saclay, DEN/DMN/SRMA, 91191 Gif sur Yvette, France

^b Ecole des Mines de Paris, Centre des Matériaux P.M. Fourt BP 87, 91003 Evry Cedex, France

^c CEA Cadarache, DEN/DEC, 13108 Saint Paul lez Durance, France

RESUME:

Cette communication concerne les propriétés mécaniques des combustibles nucléaires. Le travail réalisé a pour but d'améliorer les connaissances sur les propriétés viscoplastiques de l'UO₂, afin de permettre une meilleure maîtrise des interactions pastille – gaine. Pour cela, le Centre des Matériaux a développé un système de flexion trois points, à haute température, sous atmosphère contrôlée, spécialement adapté à la réalisation d'essais de fluage sur des éprouvettes de très petites dimensions (entraxe de sollicitation 10 mm, épaisseur 500 µm). Des spécimens ont été irradiés aux ions lourds dans l'accélérateur du GANIL de Caen, dans le but d'obtenir des défauts d'irradiation équivalents à ceux générés dans les réacteurs industriels. Les premiers essais sur ces échantillons révèlent un fluage thermique très nettement accéléré par cette irradiation : les éprouvettes se déforment en fluage en dessous de 800°C, alors que le matériau vierge ne présente une déformation viscoplastique significative qu'au-delà de 1100°C. Ici sont présentés les premiers résultats expérimentaux de fluage sur éprouvettes vierges ou irradiées. Ces premiers résultats obtenus sur UO₂ démontrent l'intérêt d'un tel dispositif pour caractériser le comportement mécanique à haute température (notamment le fluage) de matériaux irradiés aux ions. Ce dispositif pourra entre autre permettre de caractériser les différents matériaux céramiques envisagés pour les « réacteurs du futur ».

MOTS-CLES : *Dioxyde d'uranium, irradiation, fluage, flexion, haute température*

Aujourd'hui 80% de la production d'énergie électrique française est d'origine nucléaire. La production d'électricité est adaptée à tout instant à la consommation. Ce suivi de la demande du réseau est réalisé grâce aux centrales qui peuvent moduler leur puissance de fonctionnement à la demande. Le dioxyde d'uranium est utilisé comme combustible dans les Réacteurs à Eau Pressurisée, sous forme de pastilles, empilées dans un tube en Zircaloy, formant un crayon. Lors de l'utilisation de ces réacteurs, le combustible peut venir en contact avec la gaine, engendrant dans le tube de fortes contraintes. Les risques de rupture de ces premières barrières de sûreté sont multipliés lors des rampes de puissance du cœur. L'exploitant (EDF) doit assurer et démontrer l'intégrité de l'ensemble des crayons, quelles que soient les conditions de sollicitation, et souhaite prolonger les taux de combustion des combustibles, i.e. prolonger leur temps de séjour en réacteur. Pour cela, il doit notamment connaître les propriétés viscoplastiques du combustible, et disposer de lois capables de décrire son comportement dans le but de simuler le fonctionnement du cœur du réacteur. Les lois de fluage actuellement utilisées pour simuler le comportement du crayon sont suffisantes pour prévoir les évolutions en régime permanent. Cependant elles doivent être améliorées pour décrire correctement les conditions transitoires de rampes de puissance.

Ce travail s'inscrit dans ce cadre, dont le but principal est d'améliorer les connaissances sur les propriétés viscoplastiques de l'UO₂, afin d'envisager une meilleure maîtrise des interactions pastille-gaine.

Une première approche a consisté à définir le domaine des sollicitations thermomécaniques subies par la pastille durant les variations de puissance en réacteur : cette estimation a été réalisée à l'aide de codes de calcul spécifiques, dit globaux, développés par EDF ou par le CEA. Des simulations numériques thermoélastiques ont prouvé que déformations et vitesses de déformation associées restent faibles dans le combustible. De plus ces mêmes calculs ont mis en évidence des sollicitations multiaxiales (compression et traction) dans la pastille.

Partant de ce constat nous avons choisi de caractériser le comportement mécanique du dioxyde d'uranium en flexion. Pour assurer la représentativité des essais, les échantillons ont été prélevés directement dans des pastilles de format industriel (diamètre 8 mm, longueur 12 mm). L'entraxe de sollicitation a été fixé à 10 mm. Nous avons développé un dispositif spécifique de flexion trois points à haute température sous atmosphère contrôlée, représenté par la Figure 1. L'atmosphère réductrice utilisée est de

l'argon hydrogéné (5% H₂). L'ensemble du dispositif est placé dans une enceinte double paroi refroidie par eau. Un four en graphite chauffé par induction indirecte permet d'atteindre des températures très élevées : les lignes de charge en céramique autorisent des températures d'essais atteignant 1 500°C. Pour éviter tout contact préjudiciable, la mesure des déplacements est assurée par un extensomètre Laser dédié, d'une résolution de ± 2 µm à haute température. Ce dispositif permet de solliciter des éprouvettes d'épaisseur allant de 0,5 mm à 1 mm.

Le développement de ce dispositif spécifique a été réalisé dans le cadre d'une thèse au Centre de Matériaux de l'Ecole des Mines de Paris, en partenariat avec le CEA Cadarache [1]. Cette thèse avait pour but de caractériser le comportement à haute température, en fluage, du dioxyde d'uranium en flexion en condition de rampe de puissance.

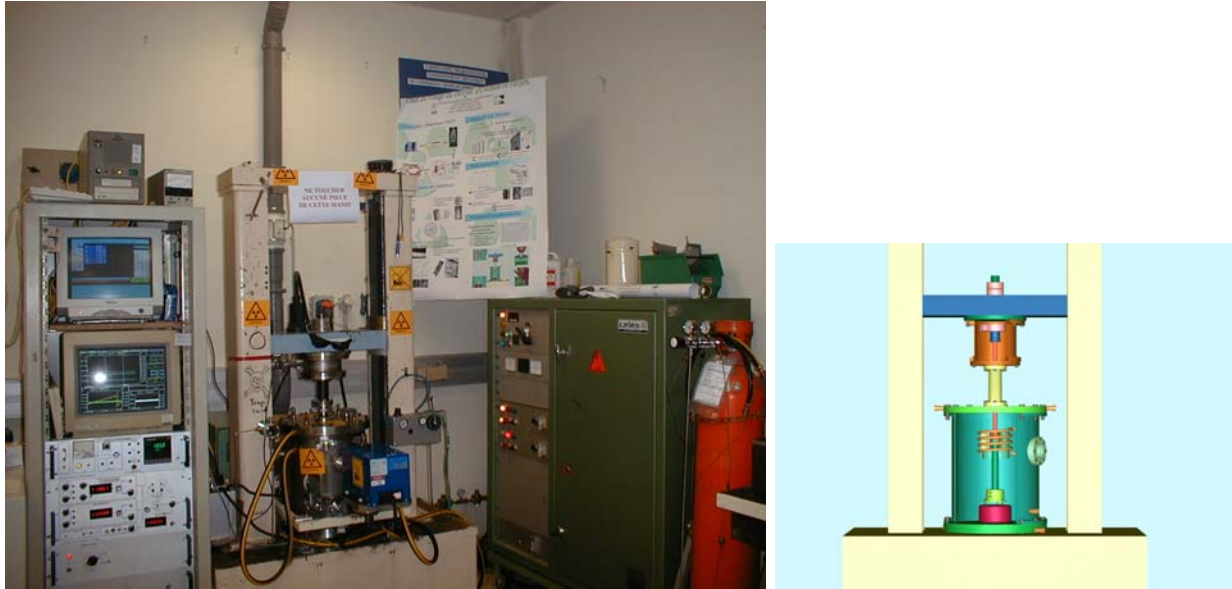


Figure 1- Vue générale et schéma du dispositif de flexion à haute température sous atmosphère contrôlée.

Ce dispositif expérimental, conçu dans le but de caractériser le fluage de petits échantillons, permet de tester de nombreuses autres céramiques nucléaires de petite taille, analogues aux pastilles de dioxyde d'uranium. Cela concerne bien sûr d'autres types de combustibles, mais également les absorbants neutroniques, les cibles pour l'incinération des actinides, les matériaux pour les réacteurs de quatrième génération,...

Une autre perspective intéressante ouverte par notre dispositif expérimental concerne la réalisation d'essais thermomécaniques sur des matériaux bombardés par des ions, simulant des matériaux irradiés en réacteur par les neutrons. La réalisation d'irradiations réelles requièrent des séjours en réacteur très longs, et leur mise en œuvre et leur interprétation sont particulièrement fastidieuses. Les examens après séjour en réacteur sont de plus très lourds à réaliser, en raison de l'activité résiduelle des matériaux testés. Une alternative consiste à simuler l'irradiation des matériaux en utilisant des flux d'ions ou d'électrons, susceptibles de produire en quelques heures des effets similaires à ceux que l'irradiation en réacteur provoquerait en plusieurs années. L'avantage majeur de l'irradiation en accélérateur réside dans le fait que, par rapport à un séjour en réacteur, les matériaux irradiés ne sont quasiment pas activés, et ne réclament donc aucune précaution particulière pour être observés ou testés. Une limite de cette simulation est la faible pénétration des ions qui ne permet de traiter que des profondeurs de matière très limitées.

Les résultats énoncés ci-dessous sont issus des travaux de thèse de Christian Colin [1]. Deux lames d'oxyde d'uranium (4 x 12 x 0,5 mm³) ont été irradiées au GANIL, à Caen, en Sortie Moyenne Energie SME, à température ambiante, sur une seule face. Les ions utilisés sont du Krypton, de masse atomique 78 et d'énergie 790 MeV. Les fluences d'irradiation obtenues sont homogènes sur la surface et sont de 6 10¹² ions.cm⁻² et 8 10¹³ ions.cm⁻². Dans ces conditions d'utilisation du faisceau, le pouvoir d'arrêt

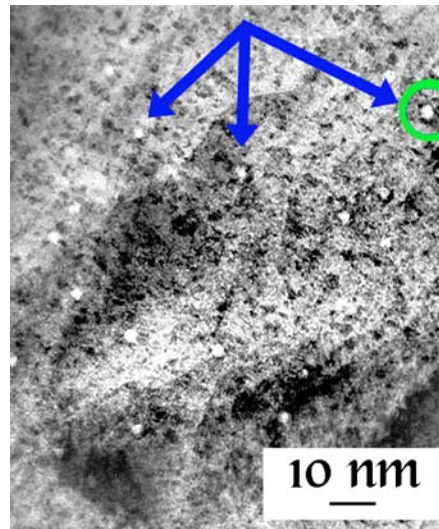
électronique calculé des particules $\left. \frac{dE}{dx} \right|_{Elect}$ est de 20 keV.nm⁻¹ en début de parcours. Cette valeur est comparable aux pertes d'énergie des produits de fission en réacteur s'étendant de 15 à 25 keV.nm⁻¹ [2].

Au cours de sa pénétration dans la matière, l'ion Kr a différents effets sur la céramique. Dans un premier temps, lorsque la vitesse des ions est maximale, les particules ralentissent et perdent leur énergie par excitation et ionisation de la cible. Au fur et à mesure que l'énergie des ions Kr décroît, les collisions avec les atomes du combustible deviennent prédominantes, engendrant nombre de déplacements atomiques. Après la perte totale de leur énergie cinétique, les ions restent dans le réseau sous forme d'impuretés. Le code de calcul SRIM permet de mieux appréhender le comportement des ions lors de cette irradiation. Ce logiciel est basé sur la technique de Monte-Carlo et utilise un traitement de mécanique quantique à chaque interaction entre les particules incidentes et la cible. Ce code a été développé à partir des travaux de Biersack [3] (pour les algorithmes de calcul), et de Ziegler [4] (pour les théories d'interactions des particules avec la matière). L'utilisation de ce code a permis d'évaluer la profondeur d'implantation de ces ions à environ 45 μm , soit 10% de l'épaisseur de l'éprouvette, pour nos conditions d'irradiation.

Nous avons procédé à une courte étude bibliographique des désordres microstructuraux créés par l'irradiation aux ions d'une céramique. Cette évolution de la microstructure a naturellement une influence sur le comportement mécanique du matériau. Près de la surface de l'éprouvette, les défauts sont essentiellement dus au passage des ions, et prennent la forme de traces cylindriques dans la céramique. En fin de parcours, il y a beaucoup plus de cascades de déplacements, et la recombinaison des différents défauts créés peut engendrer des amas fortement perturbés autour des ions Kr implantés.

Depuis les années soixante, plusieurs auteurs ont caractérisé l'endommagement du dioxyde d'uranium par irradiation. Les retours de combustible usagé ont permis récemment de nombreuses caractérisations microstructurales (MET, MEB) et mécaniques (dureté), [5, 6], mais ce sont surtout les implantations d'ions qui ont permis des études plus pointues. Ainsi les observations faites par certains auteurs [7] montrent que UO_2 ne s'amorphise pas, même pour de forts taux de déplacements à des fluences élevées, à température ambiante. Pour de très fortes énergies incidentes, de l'ordre du GeV, il peut y avoir une polygonisation, une subdivision des grains en sous-structures de très petites tailles, se rapprochant de la microstructure du RIM observée en réacteur [8]. Ce dernier point reste toutefois sujet à discussions.

Figure 2– Micrographie en transmission de UO_2 irradié avec des ions U de 1 300 MeV.



Wiss a étudié les mécanismes d'endommagement du dioxyde d'uranium par irradiation aux ions, dans des conditions comparables aux nôtres. Il a notamment mis en évidence, grâce à la microscopie électronique à transmission, de nombreuses traces, dont un exemple est donné sur la Figure 2. Wiss a étudié l'évolution du diamètre de ces traces en fonction du pouvoir d'arrêt des faisceaux utilisés. Ces travaux conduisent à estimer à environ 1nm le diamètre des traces qui seraient observées dans les éprouvettes que nous utilisons. En plus de ce paramètre énergétique qu'est le pouvoir d'arrêt électronique, un facteur important est le temps d'irradiation ou la dose d'ions reçue par les lames : c'est la fluence qui rend compte de cette durée. Les observations de Wiss par microscopie en transmission montrent que des boucles de dislocations apparaissent pour une fluence de $5 \cdot 10^{11}$ ions. cm^{-2} . On observe ensuite une forte augmentation de la concentration en défauts avec la dose reçue. Cette structure est évidemment hors équilibre. Une fois créés, lorsque la température augmente, ces défauts peuvent migrer et interagir avec d'autres défauts pour s'annihiler ou former des défauts plus complexes. L'évolution de la population de ces défauts au cours de recuits est bien connue dans les métaux [9]. La guérison se produit classiquement en cinq étapes. Le stade ultime correspond à la disparition complète des défauts par autodiffusion, à des températures supérieures à la moitié de la température de fusion du métal. Les céramiques ont beaucoup moins été étudiées.

Morillo [10] a effectué une synthèse de quelques travaux concernant l'influence de recuits après irradiation sur la résistivité électrique, utilisée comme indicateur de la concentration en défauts de l'échantillon. Les résultats sont assez différents d'un auteur à l'autre, et dépendent fortement de la céramique nucléaire considérée. De plus, les températures de chauffe ne dépassent pas 1 000°C. Lors de ces recuits, les ions implantés jouent le rôle de clusters, piégeant les défauts. Les traces du passage des ions sont supposées complètement effacées par une forte élévation de température. Pour voir cette évolution de la microstructure, il faut atteindre une température suffisamment élevée pour autoriser la mobilité des défauts dans la céramique : pour UO₂, cette transition est estimée aux environs de 1 100°C [11]. Ce seuil de température est associé à une forte accélération du relâchement des gaz de fission dans le combustible en réacteur industriel. Ces hypothèses mériteraient d'être confortées par des observations microscopiques en balayage et en transmission. Au vu de ces observations, on peut s'attendre à ce que les éprouvettes implantées fluent plus rapidement à basse température. Par contre, aux plus hautes températures, il y aurait un durcissement par les ions implantés, qui devrait conduire à un potentiel de déformation visqueuse moindre pour les éprouvettes irradiées.

Les matériaux sous irradiation en réacteur sont le siège d'une compétition entre processus d'endommagement et processus de guérison. Cette compétition pilote le comportement des matériaux et règle l'évolution de leurs propriétés. L'irradiation a deux effets principaux sur les propriétés en fluage du matériau. D'une part, avec l'introduction des nombreux défauts, il y a accélération des vitesses de déformation sous flux ; d'autre part, on assiste à l'apparition d'un fluage athermique d'irradiation proprement dit. Pour le régime de fluage stationnaire, ces influences peuvent être mises sous la forme :

$$\dot{\epsilon}_{\phi} = \underbrace{\dot{\epsilon}_{\phi=0}^{Thermique}}_{\dot{\epsilon}_{LPCC}} \underbrace{k_{\phi}}_{(1+3,86 \cdot 10^{-18} \phi)} + \underbrace{\dot{\epsilon}_{\phi}^{Irradiation}}_{1,87 \cdot 10^{-18} \sigma \dot{\phi} e^{-\frac{8100}{RT}}}$$

Partie A *Partie B*

$$= \dot{\epsilon}_{LPCC} (1 + L \phi) + 1,87 \cdot 10^{-18} \sigma \dot{\phi} e^{-\frac{8100}{RT}}$$

Le terme multiplicatif $(1 + L\phi)$ a été introduit par Leclercq [12], afin de rendre compte de l'accélération du fluage thermique. Lors des premiers travaux de thèse, nous avons caractérisé la tenue au fluage d'éprouvettes non irradiées, dont le comportement peut être décrit par la loi dite LPCC. La partie de fluage d'irradiation proprement dite est donnée par Basini [13]. Ce fluage dit d'irradiation (partie B) tient compte de la « vitesse d'irradiation » $\dot{\phi}$: il ne peut donc être mis en évidence que sous flux, d'où la difficulté pour l'étudier expérimentalement. Suivant la température et la contrainte appliquée, le fluage sous flux a une importance variable. En considérant le rapport entre les vitesses de fluage sous et hors irradiation pour une fluence et un taux de fission fixés, on montre que les déformations dues à l'irradiation sont largement prédominantes aux basses températures (typiquement jusqu'à 900°C). Suivant la contrainte appliquée, la température où le fluage thermique devient significatif s'échelonne entre 950°C et 1 250°C.

Dans notre cas, plus simple, la « vitesse d'irradiation » est nulle, puisque nous effectuons nos essais hors flux. Alors la composante du fluage d'irradiation correspondante (partie B) est nulle également. Dans cette partie nous allons particulièrement nous intéresser à l'**activation du fluage thermique par l'irradiation** (partie A) : $\dot{\epsilon}_{\phi} = \dot{\epsilon}_{LPCC} (1 + 3,86 \cdot 10^{-18} \phi)$.

Les éprouvettes irradiées ont été testées en fluage, de telle sorte que la face irradiée se trouve en traction. Afin de favoriser les comparaisons, les éprouvettes irradiées ont été testées dans des conditions analogues à certaines éprouvettes vierges : sous 60 MPa à 1 350°C. La Figure 3 illustre la différence de comportement observée entre les matériaux. Plus le matériau est irradié, moins se déforme l'éprouvette. A 1 350°C, il y a un durcissement du matériau, pour les raisons évoquées précédemment.

Pour vérifier la différence de comportement en température, un barreau a été maintenu sous une charge constante de 60 MPa, à différentes températures. Chaque palier en température s'étend sur plusieurs dizaines d'heures. La réponse du matériau est résumée sur la Figure 4. La vitesse de fluage de l'éprouvette est fortement dépendante de la température. Aux basses températures, le barreau flue. Lorsque la température augmente, la déformation de l'éprouvette n'augmente pas de manière significative, elle est même négligeable à 1 000 et 1 100°C. Enfin, elle s'accélère brutalement à 1 350°C.

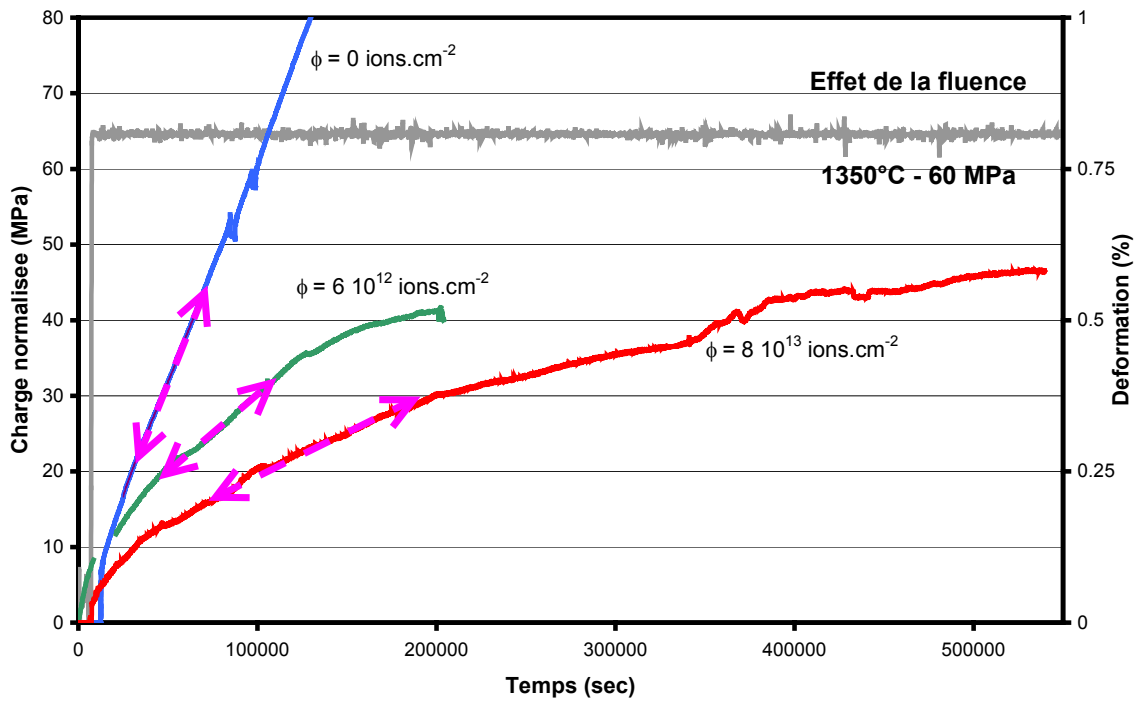


Figure 3- Effet de la fluence sur le fluage sous 60 MPa à 1 350°C de UO₂ en flexion.

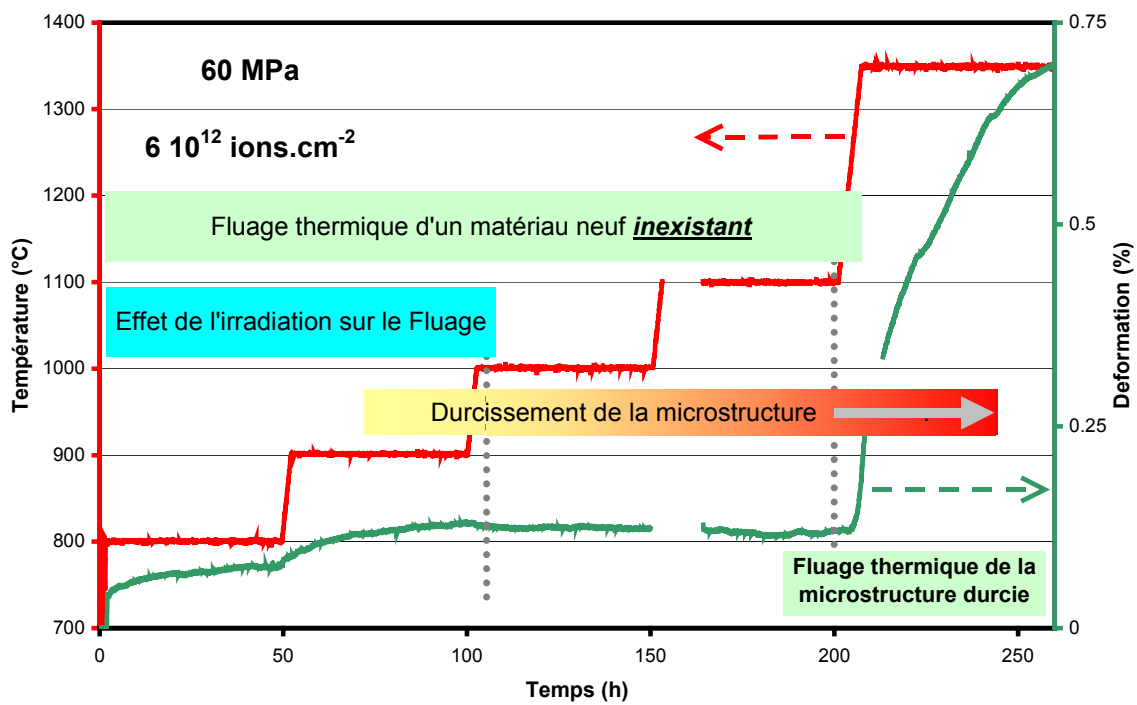


Figure 4- Fluage d'une éprouvette irradiée à $6 \cdot 10^{12}$ ions.cm⁻² sous 60 MPa en flexion en fonction de la température.

Afin d'établir une comparaison entre les comportements, la Figure 5 présente les vitesses de déformation stationnaires en fonction de la température et de la fluence. Le combustible neuf est supposé suivre une loi de la forme [1] :

$$\dot{\epsilon} \propto \sigma^{1.73} e^{-\frac{540 \text{ kJ}}{RT}}$$

Les vitesses de fluage à basse température semblent quasiment indépendantes de la température, ou pour le moins, présentent une très faible énergie d'activation apparente. L'hétérogénéité de l'irradiation

dans l'épaisseur de l'éprouvette interdit toute interprétation simple de ce type d'essai. Pour mieux expliciter le comportement du matériau implanté il faudrait avoir recours à une simulation numérique de cet essai.

Toutefois, ces conditions d'essai mettent en évidence un comportement en fluage atypique en relation avec l'irradiation. Les vitesses relevées sont 10^7 fois plus grandes que celles dues au fluage thermique du matériau vierge.

A plus haute température (1 350°C), le faible nombre d'essais effectués ne permet pas de conclure sur l'influence de la dose d'irradiation sur la vitesse de fluage stationnaire. Il semble apparaître, par exemple, sur la Figure 5, un effet de saturation similaire aux phénomènes rencontrés dans les matériaux durcis par précipitation.

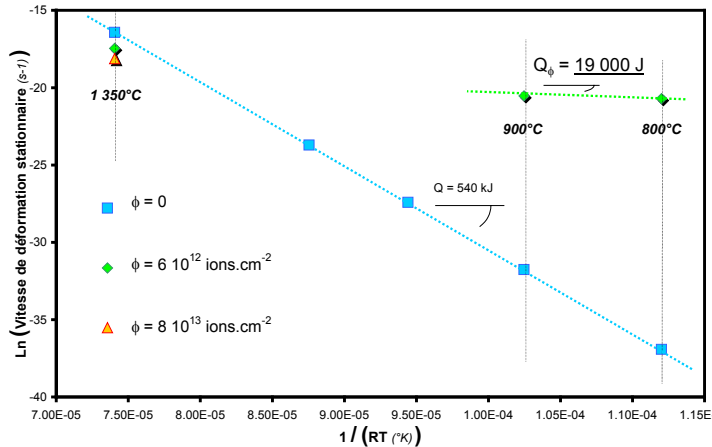
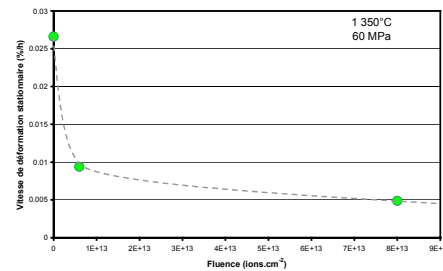


Figure 5- Vitesses de déformation stationnaires fonction de la température et de la fluence sous 60 MPa.



Conclusions

L'essai de flexion sur des éprouvettes de faible épaisseur permet donc de mettre en évidence l'activation du fluage thermique de UO_2 par l'irradiation aux ions. En choisissant au mieux les conditions d'irradiation, il est possible d'implanter des ions sur une profondeur d'environ $200\mu m$. Au final, des éprouvettes irradiées sur l'ensemble du volume pourraient être testées en flexion, et une loi prédictive plus précise du comportement sous irradiation du dioxyde d'uranium pourrait être identifiée. Ce travail serait à mettre en parallèle avec une caractérisation des microstructures obtenues juste après irradiation et en fonction des différents recuits.

Références :

- [1] Colin C., Etude du fluage du dioxyde d'uranium en flexion : caractérisation par essais de flexion et modélisation mécanique, PhD, ENSMP, Paris, **2003**.
- [2] Wiss T., Etude des mécanismes d'endommagement de UO_2 et autres matériaux nucléaires par irradiation avec des ions lourds de haute énergie, PhD, Paris Sud XI, Orsay, **1997**.
- [3] Biersack J., Haggmark L., Nucl. Instr. Meth., vol. 174, pp. 257, **1980**.
- [4] Ziegler J., Biersack J., Littmark U., The Stopping and Range of Ions in Solids, New-York, Pergamon Press, **1985**.
- [5] Matzke H., Spino J., Formation of the RIM structure in high burnup fuel, J Nucl Mater, vol. 248, pp. 170-179, **1997**.
- [6] Matzke H., Lucuta P.G., Wiss T., Swift heavy ion and fission damage effects in UO_2 , Nuc. Inst. Meth. B, vol. 166-67, pp. 920-926, **2000**.
- [7] Matzke H., Nucl Instr Meth B, vol. 65, pp. 30, **1996**.
- [8] Schlutig S., Contribution à l'étude de la pulvérisation et de l'endommagement du dioxyde d'uranium par les ions lourds rapides, PhD, CIRIL, UNIVERSITE de CAEN, **2001**.
- [9] Lucasson P., Maury F., Moser P., Production et recombinaison des défauts d'irradiation dans les métaux, Ann. Chim. Fr., vol. 9, pp. 15-47, **1984**.
- [10] Morillo J., Défauts d'irradiation dans les carbures et oxydes d'uranium, Ann. Chim. Fr., vol. 10, pp. 425-444, **1985**.
- [11] Beauvy M., Conversation privée, CEA Cadarache - DEC / SESC, **2002**.
- [12] Leclercq S., Prise en compte de l'effet du flux neutronique dans la loi de comportement viscoplastique de la pastille combustible d' UO_2 , EDF, **1999**.
- [13] Basini V., Ménard J., Mocellin A., 2002, Mesures des propriétés mécaniques des matériaux nucléaires au CEA, in : Seminaire CdM, Evry, ENSMP, **2002**.