



**HAL**  
open science

## Etude de l'interface et de l'adhésion combustible-gaine dans les réacteurs à eau pressurisée

C. Ciszak, L. Fayette, Sébastien Chevalier

► **To cite this version:**

C. Ciszak, L. Fayette, Sébastien Chevalier. Etude de l'interface et de l'adhésion combustible-gaine dans les réacteurs à eau pressurisée. 48èmes Journées d'Etude sur la Cinétique Hétérogène (JECH), Mar 2017, Compiègne, France. cea-02434011

**HAL Id: cea-02434011**

**<https://cea.hal.science/cea-02434011>**

Submitted on 9 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



## ÉTUDE DE L'INTERFACE ET DE L'ADHÉSION COMBUSTIBLE-GAINE DANS LES REACTEURS A EAU PRESSURISÉE

*Clément CISZAK<sup>a</sup>, Laurent FAYETTE<sup>a</sup>, Sébastien CHEVALIER<sup>b</sup>*

<sup>a</sup> : CEA Cadarache, DEN/DEC/SA3C/LEMCI, 13108 Saint-Paul-lez-Durance.

<sup>b</sup> : ICB, UMR 6303 CNRS, Univ. de Bourgogne Franche-Comté, 9 Av. Alain Savary, 2100 Dijon.

UBFC



UNIVERSITÉ  
BOURGOGNE FRANCHE-COMTÉ



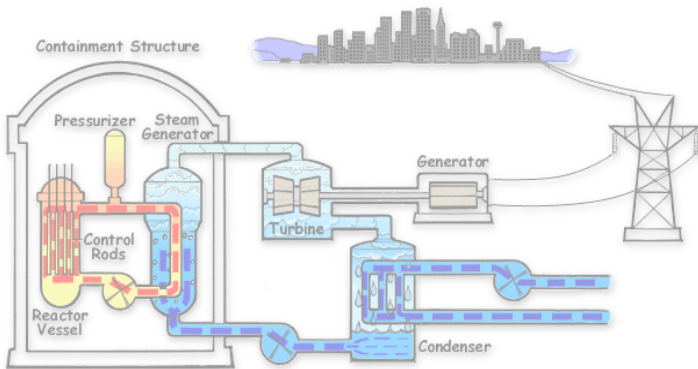
LECA|STAR

Laboratoire d'Examens des Combustibles Actifs  
Station de Traitement, d'Assainissement et de Recyclage



[www.cea.fr](http://www.cea.fr)

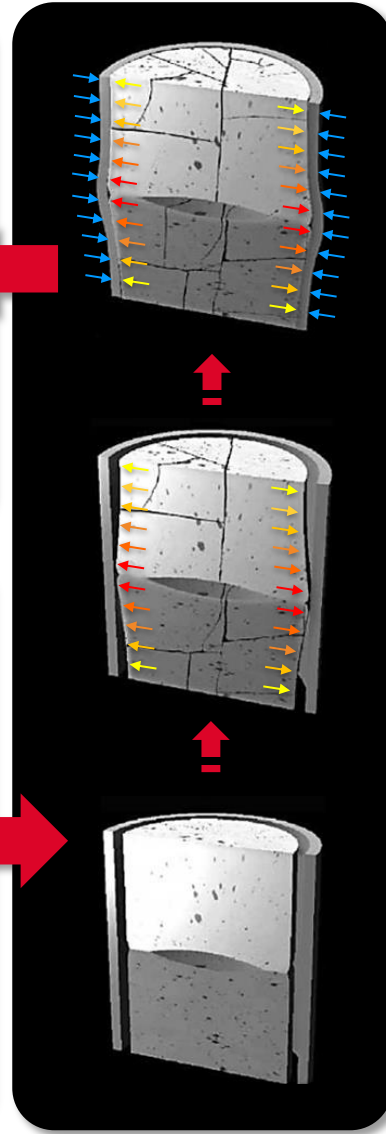
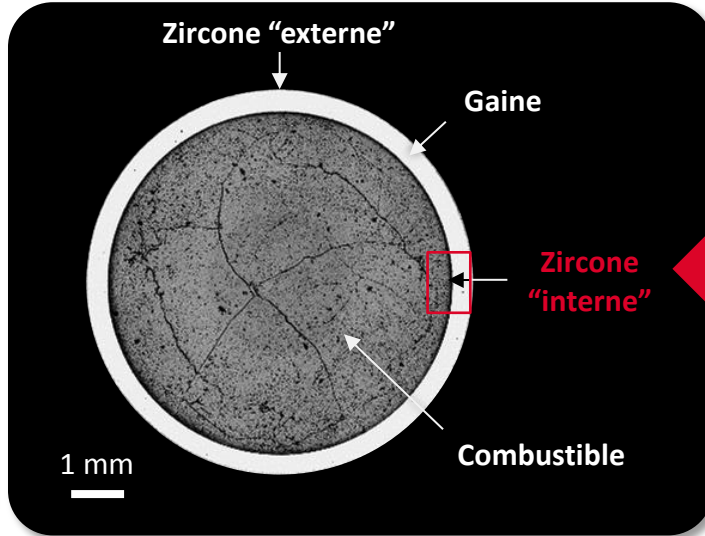
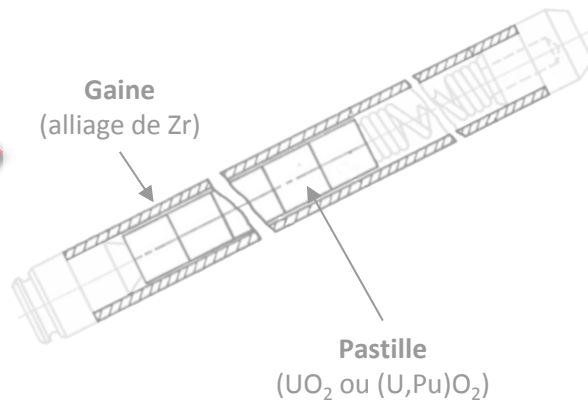
### Réacteur à eau pressurisée (REP)

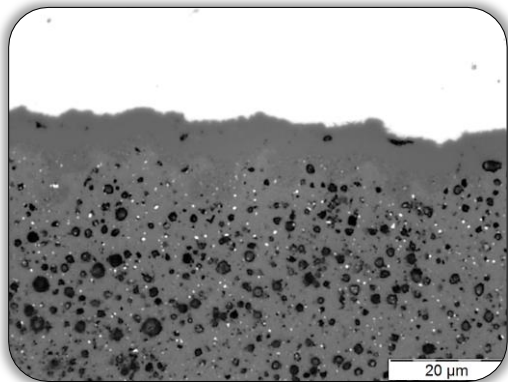


### Assemblage combustible



### Crayon combustible



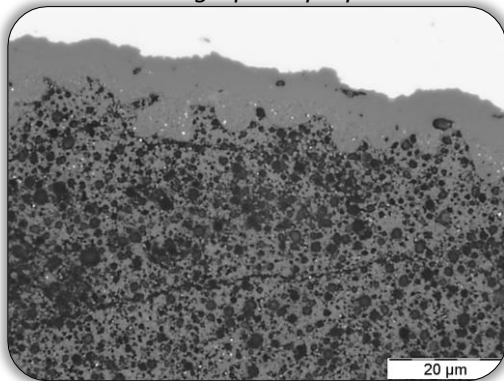


Gaine

Zircone interne

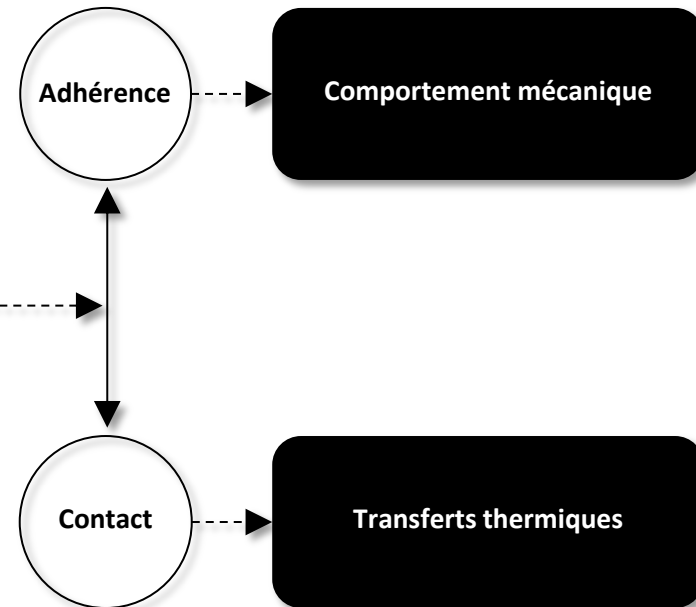
Combustible

Micrographie optique



Même zone après attaque  $H_2SO_4 - H_2O_2$

- Influence de l'adhésion combustible-gaine sur le comportement des crayons :



- Travaux précédents [1] :

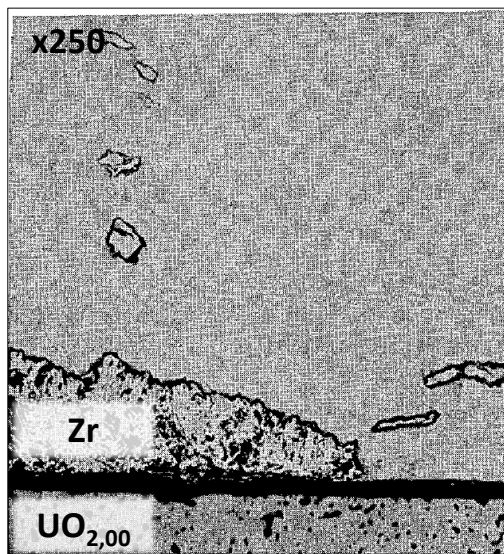
[1] Contribution à la modélisation du couplage mécanique/chimique de l'évolution de l'interface pastille-gaine sous irradiation, J-B. MINNE, Thèse de Doctorat, Dijon, 2013.

- Problématique :

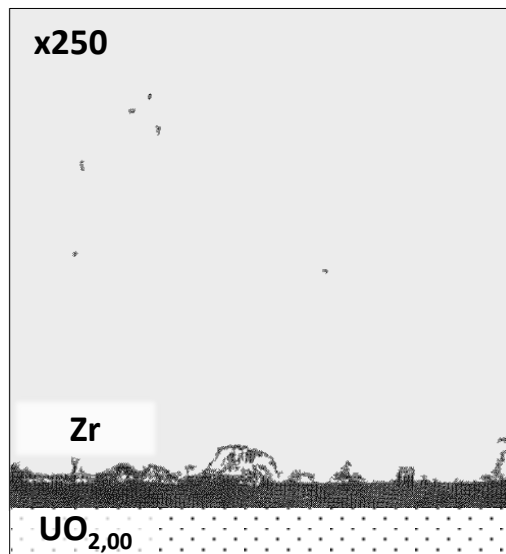
**Comment l'adhésion combustible-gaine s'établit-elle et évolue-t-elle ?**

## Réactivité des matériaux hors réacteur [2-4]

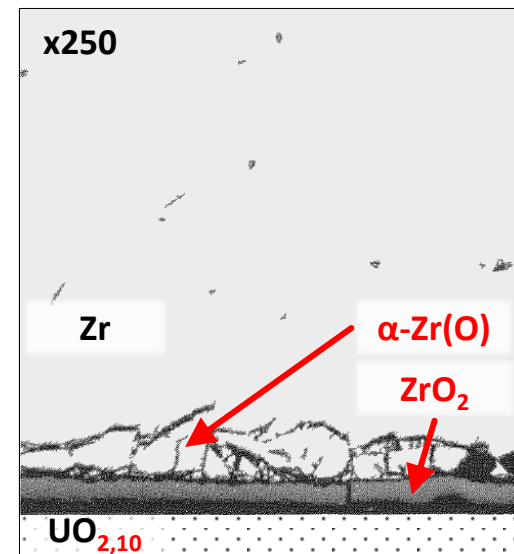
- Oxydation marquée du Zr par l' $\text{UO}_2$  seulement en condition sur-stœchiométrique



400°C / 13872 h / 345 bars He



825°C / 17,5 h / Ar



825°C / 17,5 h / Ar

[2] M. W. Mallett, A. F. Gerds, A. W. Lemmon, and D. L. Chase, *The kinetics of the zirconium-uranium dioxide reaction*, BMI-1028, 1955.

[3] A. W. Lemmon, A. F. Gerds, J. W. Droege, M. W. Mallett, *The zirconium-uranium dioxide reaction*, BMI-1210, 1957.

[4] L. N. Grossman and D. M. Rooney, *Interfacial reaction between  $\text{UO}_2$  and Zircaloy-2*, GEAP-4679, 1965.

## Origines potentielles de l'adhésion [5,6]

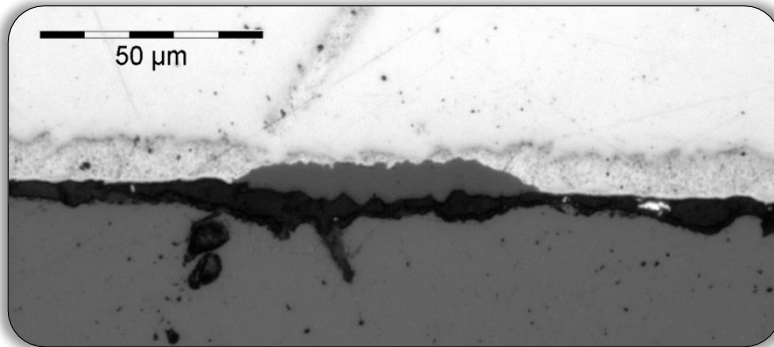
- Physiques / Chimiques / Mécanique

[5] M. Aufray, *Adhésion et adhérence des Matériaux*, Fascicule de cours INP-ENCIACET, 2009.

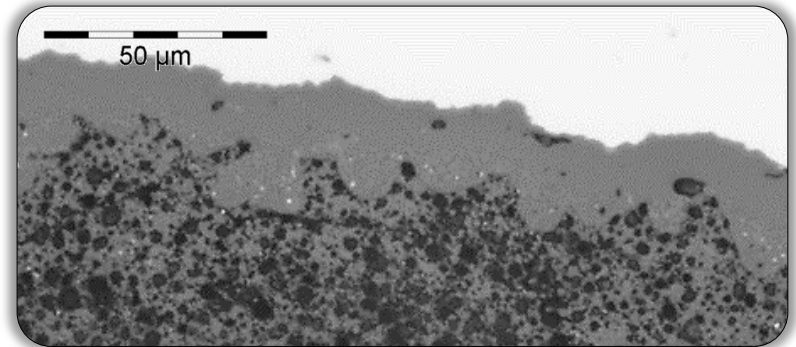
[6] D.E. Packham, *Theories of Fundamental Adhesion*, in: L.F.M. da Silva, A. Öchsner, R.D. Adams (Eds.), *Handb. Adhes. Technol.*, Springer Berlin Heidelberg, 2011: pp. 9–38.



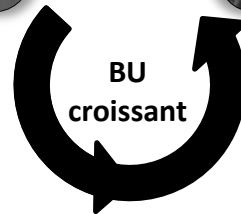
Description phénoménologique de l'adhésion combustible-gaine en réacteur



1 Ilots de zircon



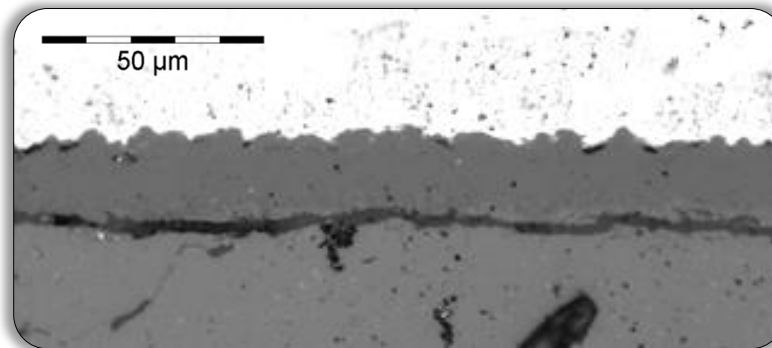
3 Liaison combustible-gaine



BU : Burnup (ou Taux de combustion)

$$BU = \frac{GWj \cdot t_U^{-1}}{GWj} = \frac{\text{Energie totale libérée par la fission}}{\text{masse initiale de métal}}$$

10 GWj.t<sub>U</sub><sup>-1</sup> ≈ 1 an en réacteur



2 Couche de zircon

- Rôle important de la couche de zircon interne dans l'adhésion combustible-gaine

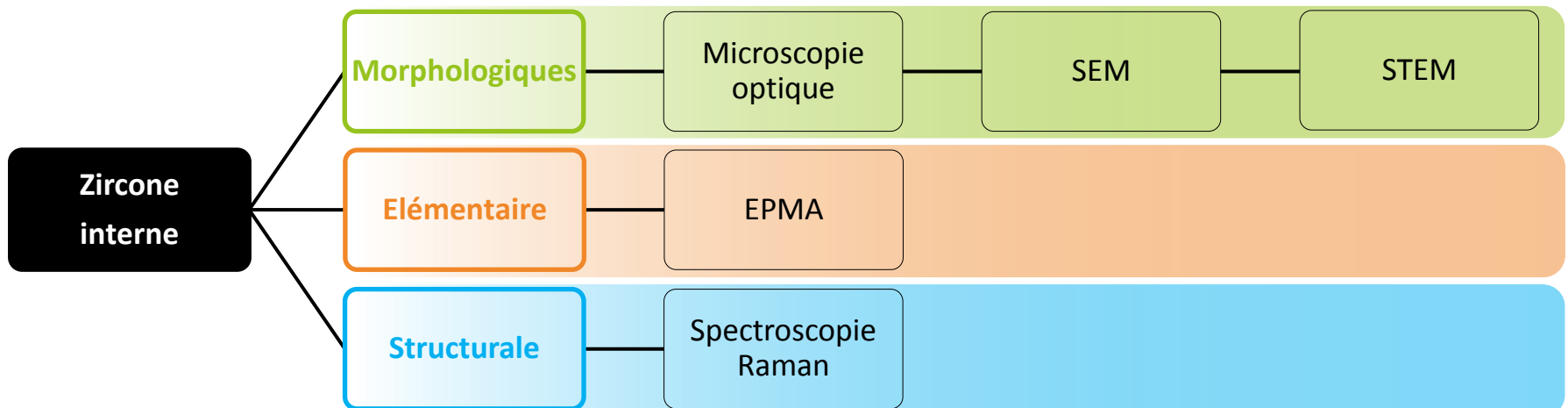
## Objectifs et démarche d'investigation

### Détermination des mécanismes physico-chimiques

- Caractérisation fine de l'interface sur échantillons irradiés en REP
- Etude à effets séparés sur matériaux modèles hors irradiation
- Etude à effets séparés sur matériaux modèles sous irradiation

### Caractérisation mécanique de l'accrochage

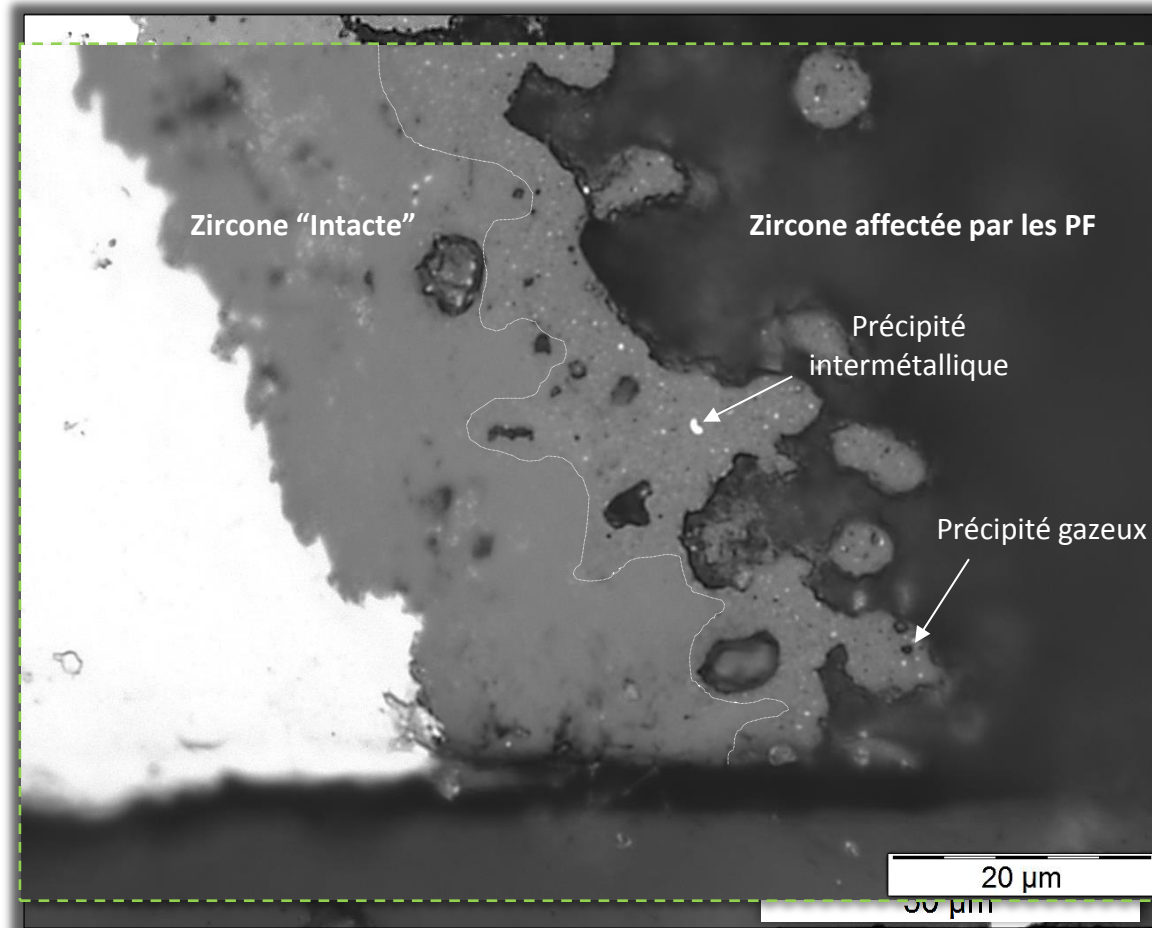
- Quantification de l'adhérence



Coupe biaisée d'un échantillon à  $54 \text{ GWj.t}_U^{-1}$  [7]

Microscopie  
optique

Après attaque chimique sélective du combustible



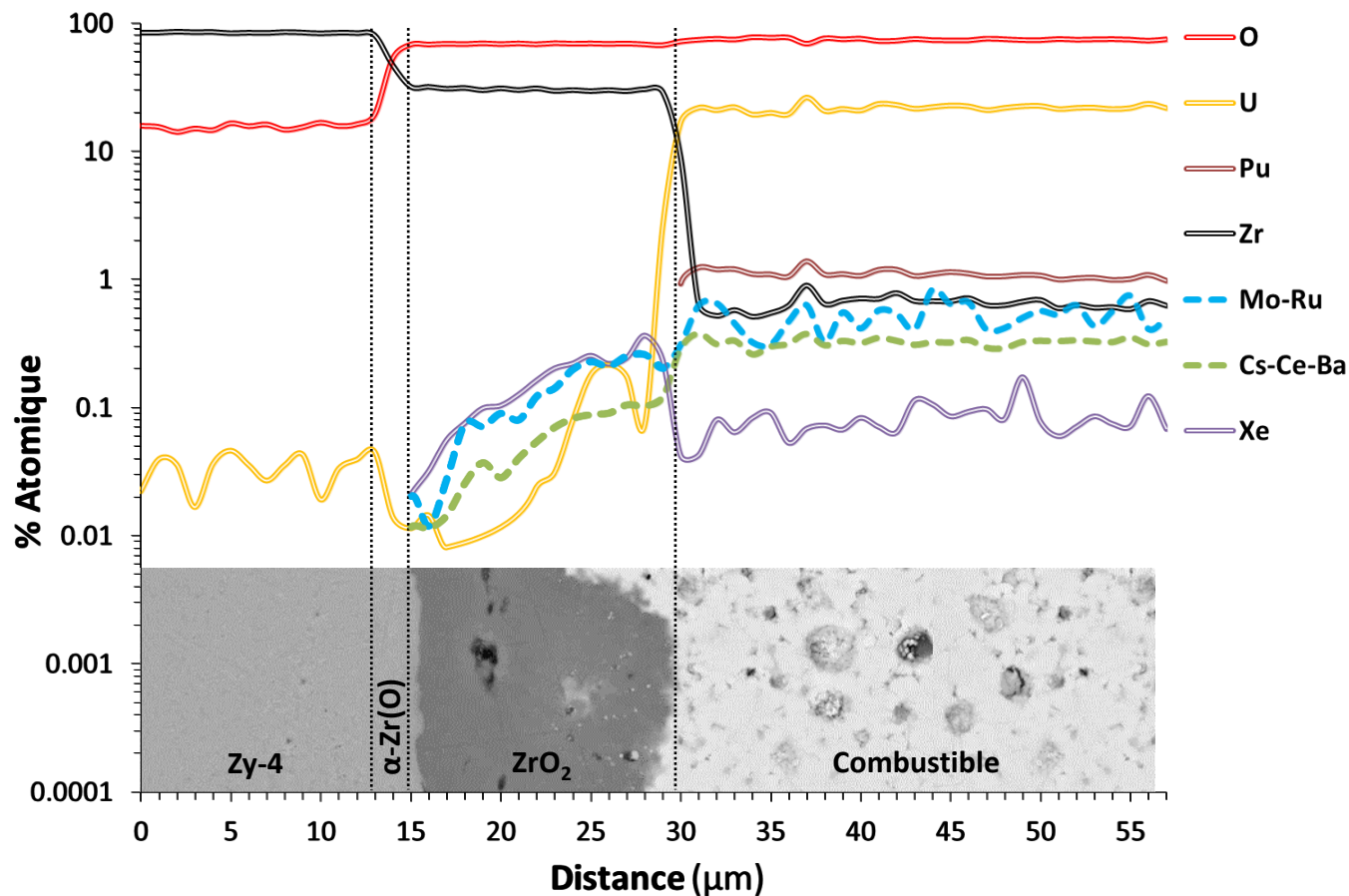
- Contribution mécanique à l'adhésion zircone-combustible

[7] C. Cizak et al., From cladding oxidation to fuel-clad strong bonding in PWR fuel rods: investigation of the fuel-clad interface evolution by morphological, structural and elementary analyses, 4th Nuclear Materials Conference, Montpellier, France, 2016.



Profils élém. à l'interface combustible-gaine sur un échantillon à  $54 \text{ GWj.t}_U^{-1}$  [7,8]

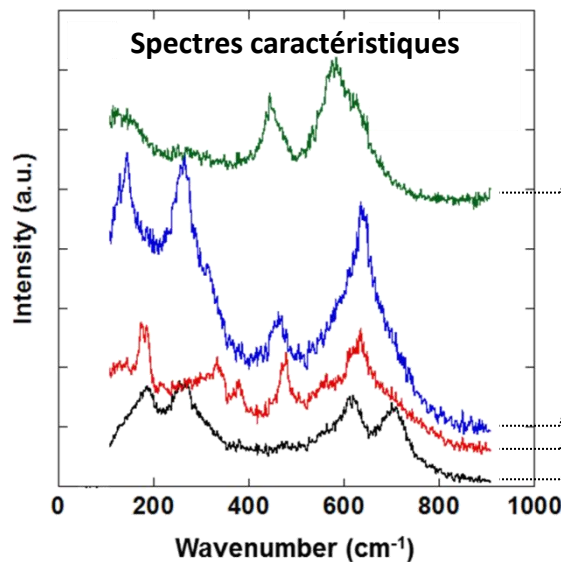
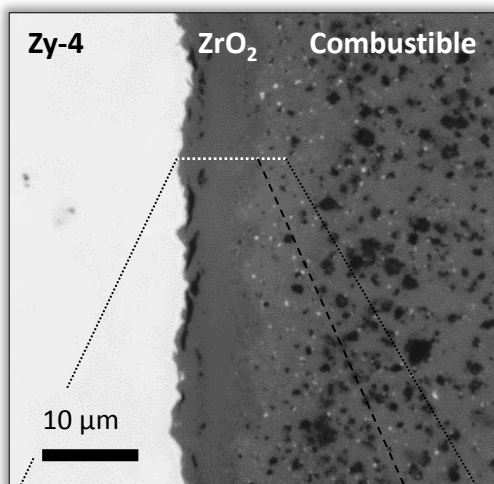
EPMA



- Gradient d'implantation de PF pouvant modifier les comportements physico-chimiques et mécaniques

Profil Raman à l'interface combustible-gaine sur un échantillon à  $54 \text{ GWj.t}_U^{-1}$  [7,8]

Spectroscopie Raman

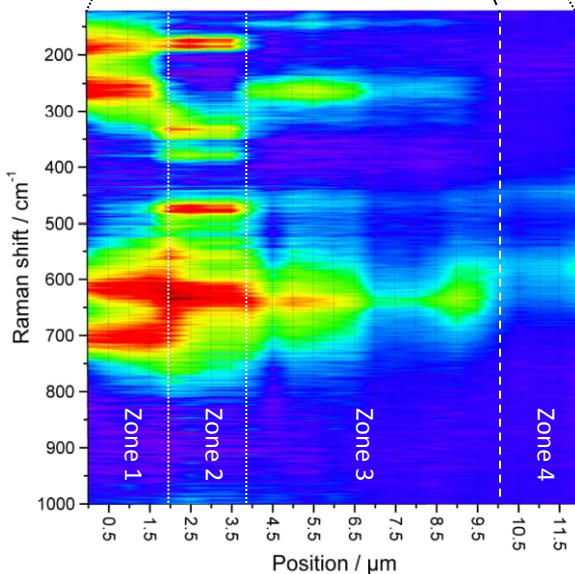


Zone 4 :  $\text{UO}_2$  (cubique centré) 

Zone 3 :  $\beta\text{-ZrO}_2$  (quadratique) 

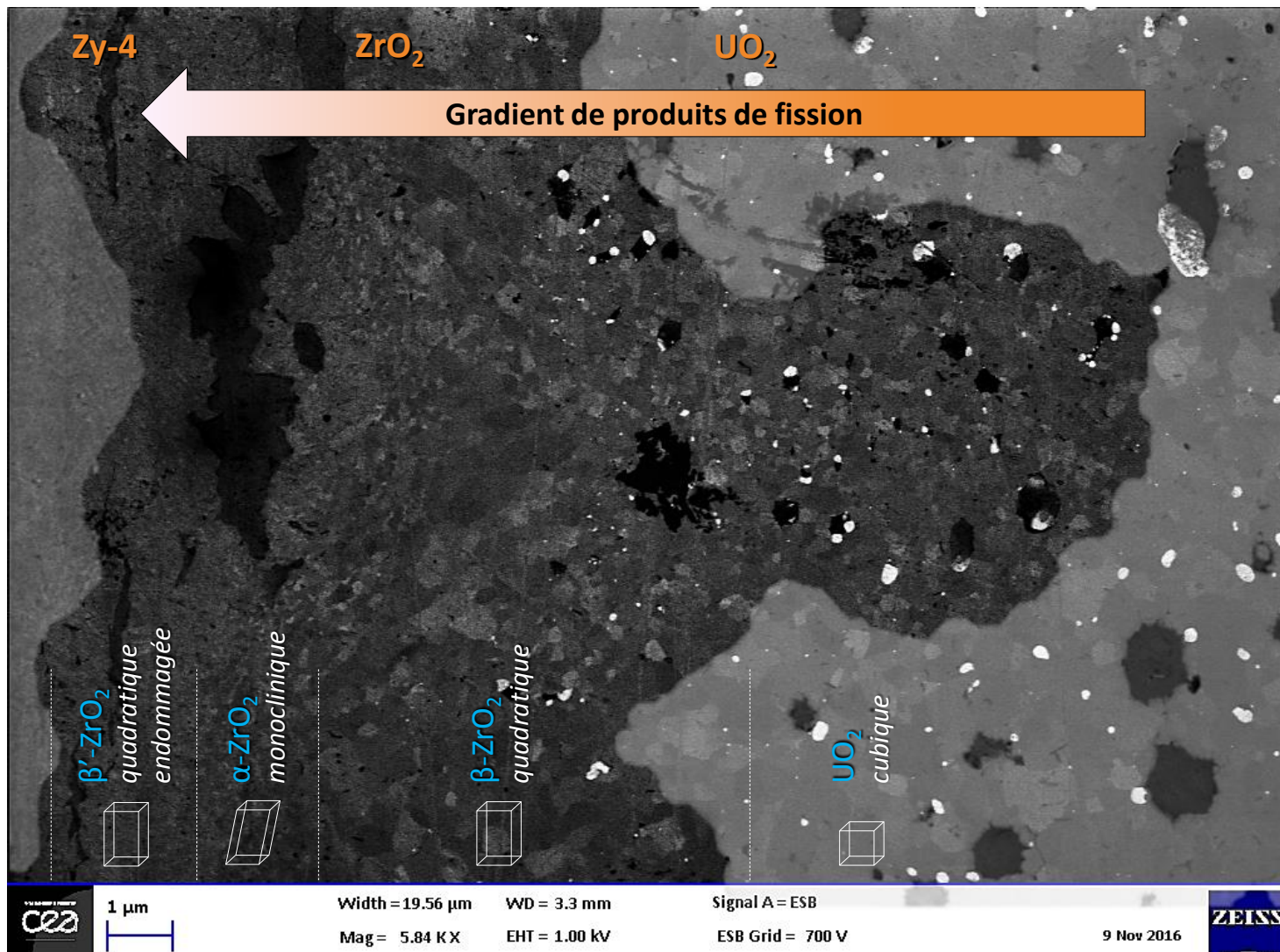
Zone 2 :  $\alpha\text{-ZrO}_2$  (monoclinique) 

Zone 1 :  $\beta'\text{-ZrO}_2$  (quadratique endommagée) 



- Stratification cristallographique de la couche de zircon
- Stabilisation de  $\beta\text{-ZrO}_2$  par dopage chimique et/ou endommagement

Coupe transverse d'un échantillon à 54 GWj.t<sub>J</sub><sup>-1</sup> [8]



EPMA

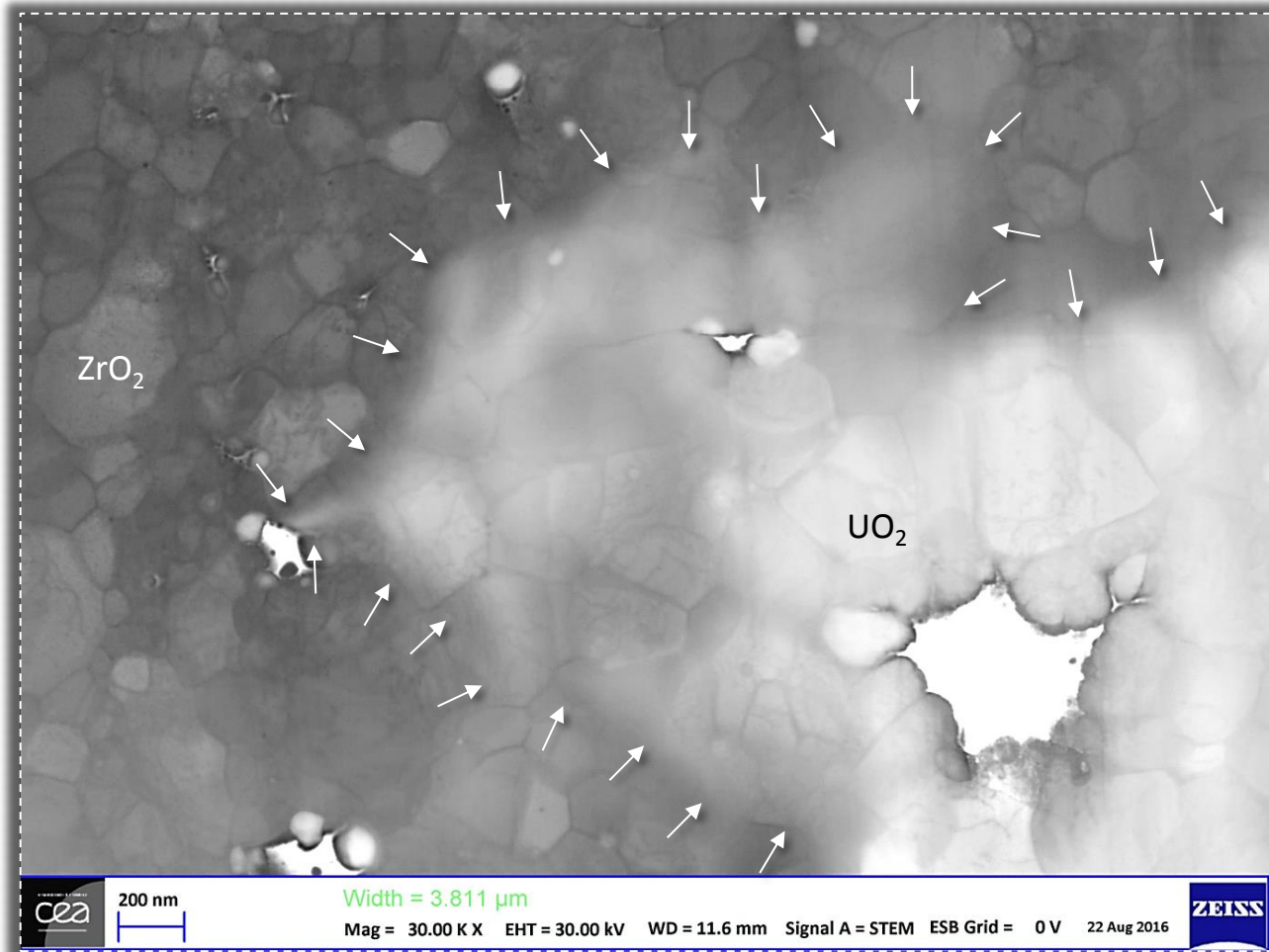
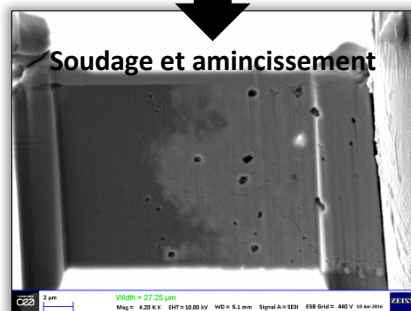
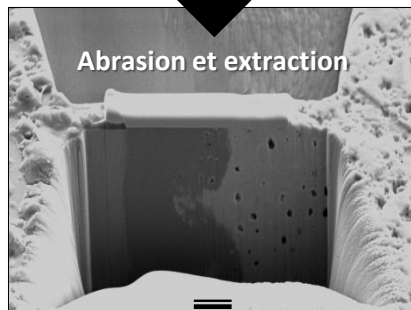
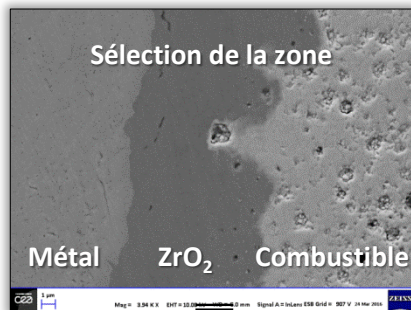
SEM

Raman



Extraction d'une lame mince de l'échantillon à  $54 \text{ GWj.t}_U^{-1}$  [7]

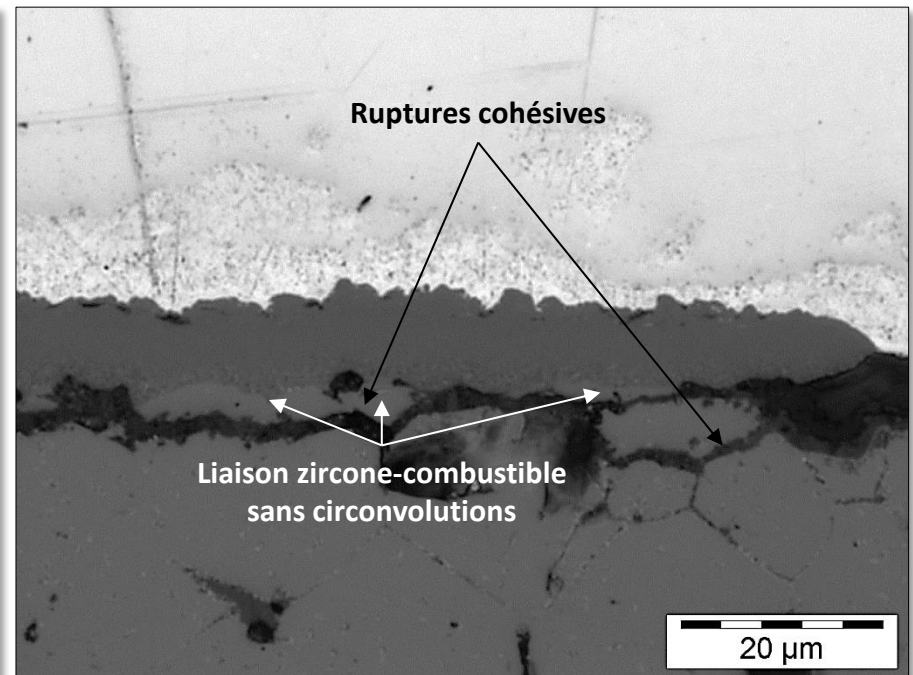
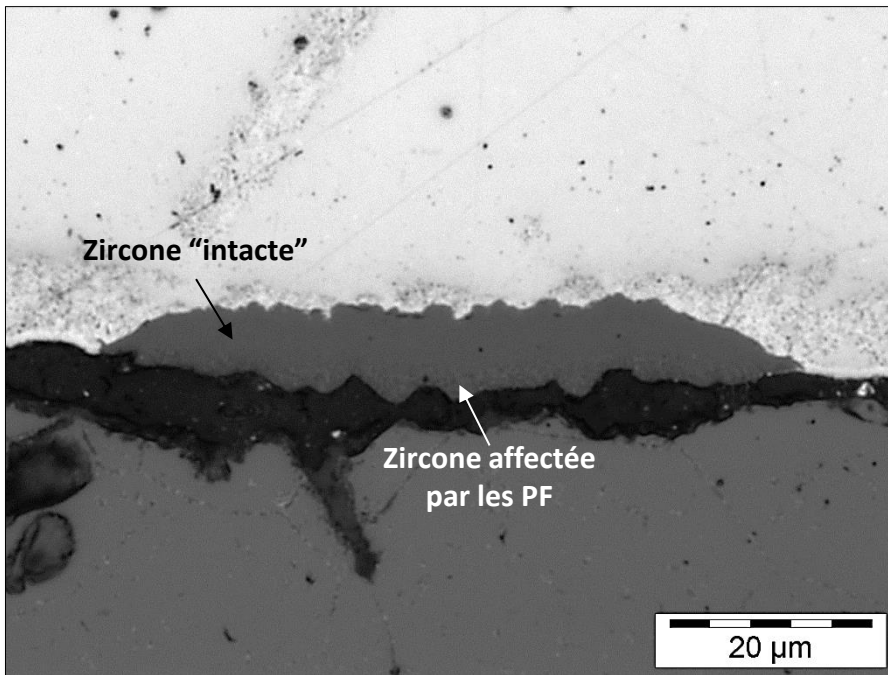
SEM - FIB - STEM



- MET nécessaire pour investiguer davantage

Coupe transverse d'un échantillon à  $37 \text{ GWj.t}_U^{-1}$  [7]

Microscopie  
optique

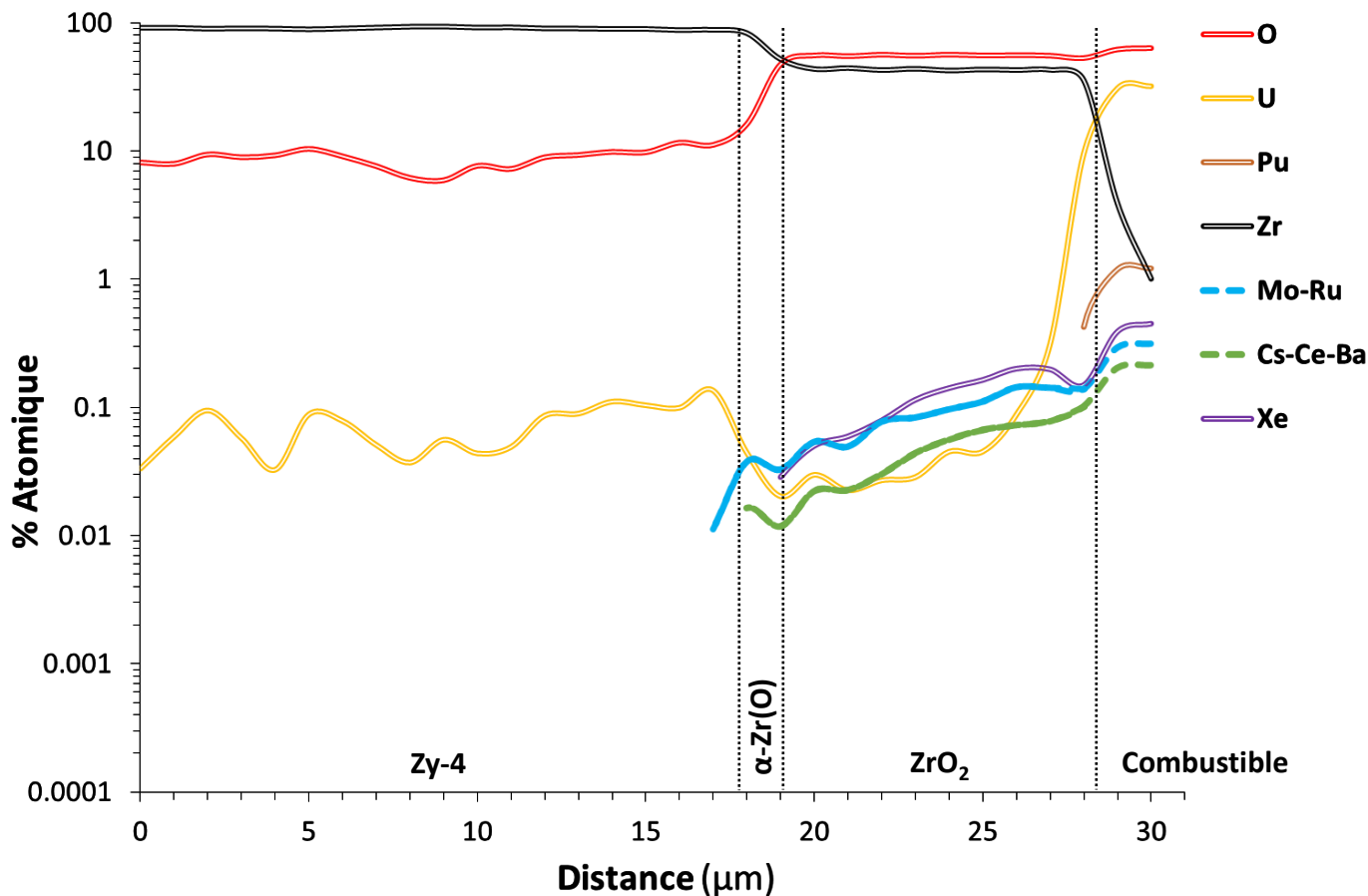


- Circonvolutions interfaciales non-essentielles à l'adhésion zircone-combustible



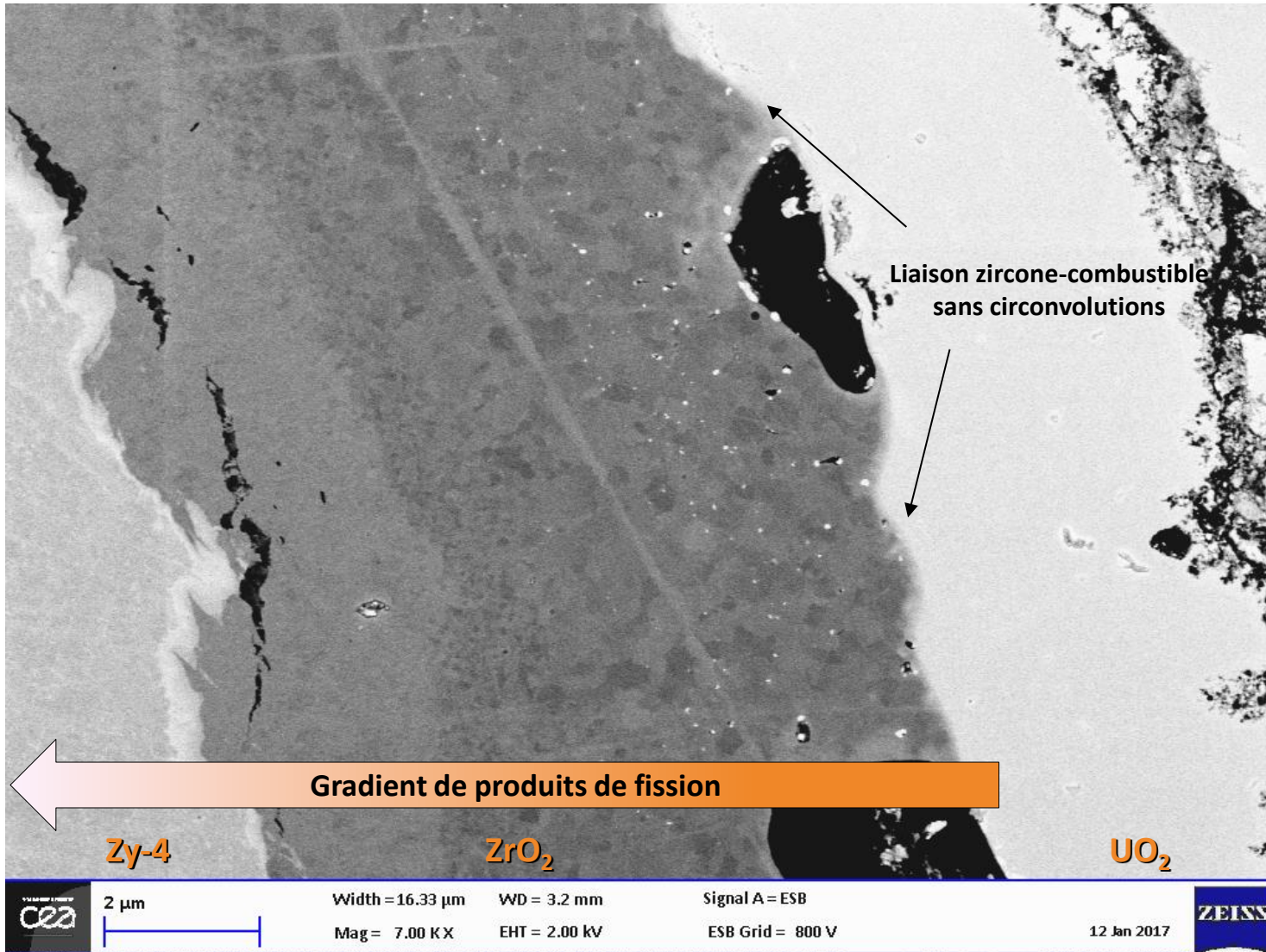
Profils élémentaires à l'interface combustible-gaine sur un échantillon à  $37 \text{ GWj.t}_U^{-1}$

EPMA



- Gradient d'implantation de PF pouvant modifier les comportements physico-chimiques et mécaniques

Coupe transverse d'un échantillon à  $37 \text{ GWj.t}_U^{-1}$



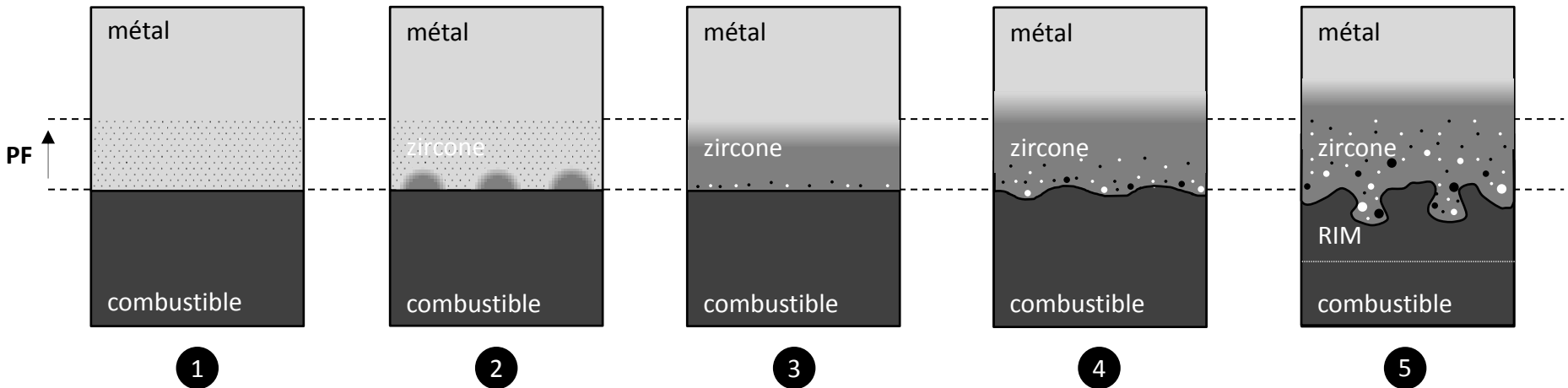
Raman

SEM

EPMA

Conclusion

Scénario de germination et croissance de la zircone interne



- 1 **Mise en contact progressive** du combustible (gonflement et dilatation thermique) avec la gaine (fluage interne) à faible BU.
- 2 Fissions → « libération d'O » → sur-stœchiométrie de l' $\text{UO}_2$   
Effet tampon local de la gaine → **germination localisée d'oxyde sous forme d'ilots**  
Zone d'influence des PF → défauts d'irradiation → **cinétique d'oxydation rapide**
- 3 Croissance des ilots d'oxyde → **développement d'une couche d'oxyde continue**  
Zone d'influence des PF → défauts d'irradiation → **cinétique d'oxydation rapide**
- 4 Au-delà de la portée des PF → couche de zircon exempt de défauts d'irradiation  
→ **retour à un régime cinétique d'oxydation classique** (plus lent qu'initialement)
- 5 Instabilité interfaciale entre zircon et combustible → évolution morphologique progressive → **interpénétration des 2 composés**

## Conclusion

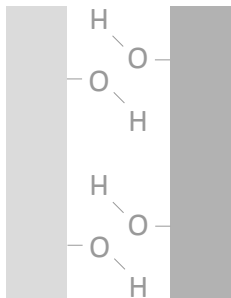
### Origines de l'adhésion entre le combustible et la gaine

#### Données

- Développement progressif de **circonvolutions interfaciales** entre le combustible et la zircone à burnup croissant
- **Adhésion effective sans circonvolutions**
- **Ruptures cohésives** dans le combustible dès les premières adhésions

#### Théories de l'adhésion

##### Physiques



Liaisons H

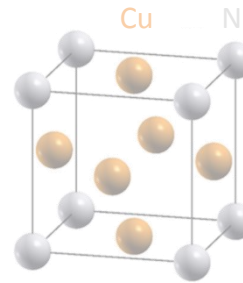
**Keesom**  
dipôle / dipôle

**Debye**  
dipôle / dipôle induit

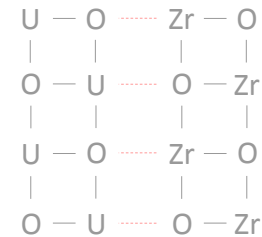
**London**  
dipôle induit / dipôle induit

Liaisons de VdW

##### Chimiques

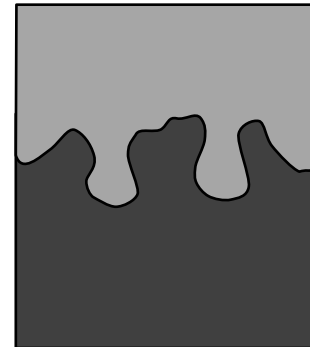


Liaisons métallique



Liaisons iono-covalente

##### Mécanique



Ancrage physique

Liaison chimique

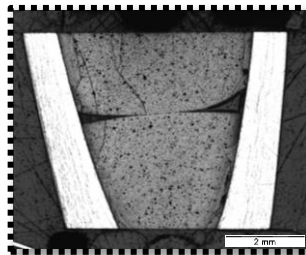
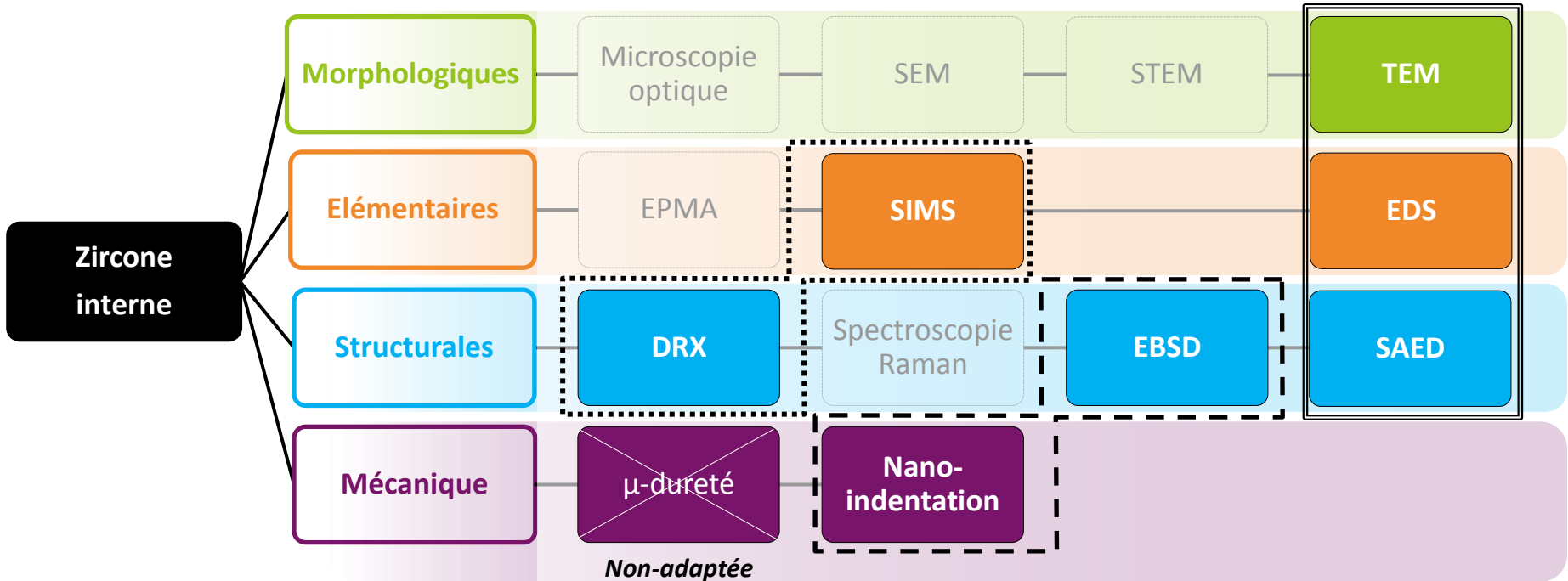
Liaison iono-covalente interfaciale ?

Renforcement mécanique progressif

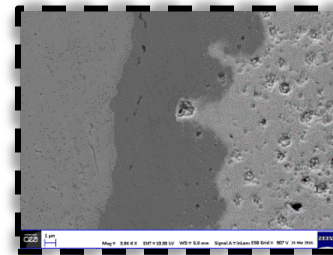
Circonvolutions interfaciales

Adhésion  
zircone-combustible

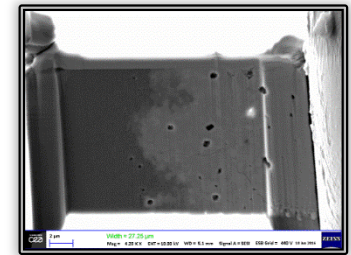
Perspectives : caractérisations complémentaires



Tuile de gaine



Coupe transverse



Lame mince



# Merci de votre attention

## Remerciements

LEMCI, LCU, LIEN, LLCC, LAMIR (Cadarache)

LMPA (Marcoule)

LE (Pierrelatte)

CEMHTI (Orléans)

LECI, LA2M (Saclay)

ICB (Dijon)

LEPMI (Grenoble)

*clement.ciszak@cea.fr*