

Caractérisation du comportement à rupture de tubes de gaines des crayons combustibles après un Accident de Perte de Réfrigérant Primaire

Mi HE^a, Jacques BESSON^b, Aurore PARROT^c, Sylvain LECLERCQ^d

^a EDF-R&D, Dept MMC, Avenue des Renardières, 77818 Moret Sur Loing, France – mi.he@edf.fr

^b Mines ParisTech, Centre des Matériaux, BP 87, 91003 Evry, France – jacques.besson@ensmp.fr

^c EDF-R&D, Dept MMC, Avenue des Renardières, 77818 Moret Sur Loing, France – aurore.parrot@edf.fr

^d EDF-R&D, Dept MMC, Avenue des Renardières, 77818 Moret Sur Loing, France – sylvain.leclercq@edf.fr

RESUME:

Dans le cadre des études visant à garantir l'intégrité de la gaine des crayons combustibles, EDF est amené à caractériser la ductilité de la gaine après Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP). L'étude porte sur la caractérisation du comportement à rupture de tubes en Zircaloy-4 détendu pour lesquels les conditions d'APRP ont été simulées en laboratoire par une oxydation en vapeur à haute température suivie d'un refroidissement. L'oxydation est effectuée à 1100°C et à 1200°C pour différentes durées ce qui conduit à des niveaux d'oxydation de 3% à 25% d'ECR (Equivalent Cladding Reacted). Deux types de refroidissement sont par ailleurs effectués : trempe à l'eau et refroidissement à l'air. Les essais Expansion due à la Compression (EDC) sont effectués sur les tubes ayant subi l'oxydation et le refroidissement. Le comportement à rupture des tubes est caractérisé à partir de l'analyse des courbes macroscopiques force/déplacement de l'essai, du champ de déformations des tubes mesuré par stéréo-corrélation d'images et grâce à l'observation des échantillons rompus ou pré-déformés. L'interprétation des essais EDC est complétée par la modélisation de cet essai par la méthode des éléments finis.

MOTS-CLES : Zircaloy4, Accident de Perte de Réfrigérant Primaire, Expansion Due à la Compression, Eléments finis.

Introduction

Le cœur des réacteurs à eau pressurisée (REP) du parc électronucléaire français est constitué d'assemblages de combustible comportant des crayons constitués d'une gaine en alliage de zirconium dans laquelle sont empilées les pastilles d'oxyde d'uranium (UO₂, MOX). Les alliages de zirconium sont utilisés pour leur bonne résistance à corrosion, leur faible section d'absorption des neutrons, leur bon comportement à haute température et leur ductilité. En réacteur, les propriétés mécaniques des tubes de gainage se modifient sous l'influence de différents phénomènes. Dans le cadre des études visant à garantir l'intégrité de la gaine, EDF est amené à caractériser l'évolution de la ductilité de la gaine lors de son séjour en réacteur ou après une situation accidentelle telle que l'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire.

L'Accident de Perte de Réfrigérant ou APRP correspond à une dépressurisation brutale du circuit primaire du réacteur due à une brèche sur une de ses branches et conduit à un assèchement du cœur. Les gaines sont alors soumises à une température pouvant atteindre localement 1000 à 1200°C et à un accroissement de l'écart de pression entre l'intérieur et l'extérieur du crayon. Ces phénomènes conduisent à un ballonnement/gonflement de la gaine qui peut entraîner sa rupture. Les gaines sont également le siège d'une oxydation en phase vapeur et d'une transformation métallurgique. Elles subissent ensuite une trempe lors du renoyage du cœur par les injecteurs de sécurité. Sous l'effet de ce choc thermique, la gaine fragilisée par l'oxydation et soumise à des contraintes thermiques importantes, peut rompre. La microstructure résultante à l'issue de l'accident comporte une couche d'oxyde (zircone, ZrO₂), une phase fragile dite $\alpha(O)$ (riche en oxygène) et une phase dite ex- β conservant une certaine ductilité.

Lors d'un APRP, le maintien de la refroidissabilité du cœur et le confinement constituent les enjeux majeurs pour la sûreté. Pendant la phase de ballonnement les crayons de combustible peuvent être le siège de déformations importantes qui peuvent bloquer ou boucher les canaux hydrauliques et remettre en cause leur refroidissement. Dans la seconde phase de l'accident, lors du renoyage, la rupture de la gaine à la trempe

ou sous une sollicitation post-trempe peut également conduire à la perte d'une géométrie refroidissable. Des critères ont été proposés pour assurer le respect du principe de sûreté.

Dans le cas de la tenue à la trempe ces critères ont été établis sur des gaines vierges en alliage de type Zircaloy sur la base d'oxydations suivies de trempe et de caractérisations de la ductilité résiduelle post-trempe. Ils concernent l'oxydation totale de la gaine qui ne doit pas dépasser 17% de l'épaisseur de la gaine et la température maximale de la gaine au cours du transitoire qui doit rester inférieure à 1204°C. Cependant, un besoin de révision de ces critères a fait jour du fait de l'apparition de nouveaux gainages avancés et de l'établissement de ces critères à partir de matériaux non corrodés donc non hydrurés.

Des travaux de recherche sont menés depuis plusieurs années par EDF, le CEA et Areva pour mieux appréhender le comportement des alliages de zirconium post-trempe [1][2][3]. En particulier, la ductilité résiduelle après un transitoire d'APRP simulé est étudiée au travers d'essais de choc, d'essais de flexion et d'essais de compression d'anneaux qui sont les essais de référence à l'international. Le schéma de principe des essais de compression d'anneaux ainsi que des courbes macroscopiques typiques associées à ces essais sont représentés Figure 1.

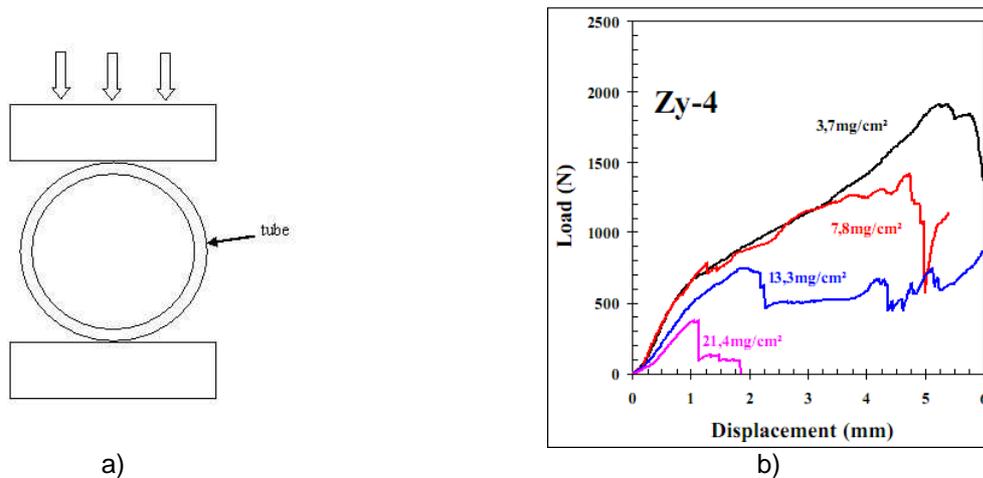


Figure 1 : a) Principe des essais de compression d'anneaux – b) Courbe de chargement macroscopique [1]

Les essais de compression d'anneaux conduisent à un champ de contrainte complexe au sein de l'échantillon. De plus les courbes macroscopiques de chargement présentent plusieurs chutes de charge avant la rupture finale de l'éprouvette (Figure 1b). La définition de la ductilité résiduelle à partir de ces essais peut ainsi être délicate et subjective.

L'objectif de cette étude est de caractériser la ductilité résiduelle des gaines après APRP par un nouvel essai : l'essai d'Expansion Due à la Compression (EDC) (Figure 2a) développé à Studsvik [4]. Cet essai permet en particulier de développer un champ de contrainte plus homogène dans le sens circonférentiel de la gaine (Figure 2b) et cela facilite le dépouillement de l'essai.

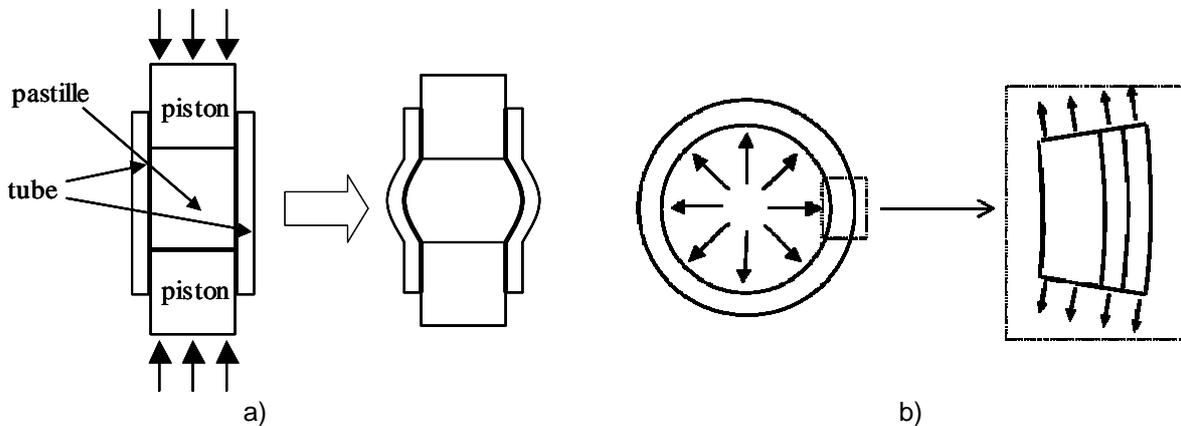


Figure 2 : a) Schéma de l'essai EDC, b) chargement dans le tube (vu de l'axe)

Dans cette étude les conditions d'APRP sont simulées en laboratoire par une oxydation isotherme en vapeur à haute température suivie d'un refroidissement à l'air ou d'une trempe. Le gain de masse dû à l'oxydation est mesuré et la microstructure des gaines oxydées/refroidies est observée. Le comportement des gaines oxydées/refroidies est ensuite caractérisé par l'essai EDC. Les gaines rompues après l'essai EDC sont observées au microscope électronique à balayage. Finalement les simulations de l'essai EDC par la méthode des éléments finis sont effectuées pour modéliser le comportement mécanique de la gaine.

Traitement d'APRP simulé (Essai oxydation/refroidissement)

Le matériau de l'étude est le Zircaloy-4 détendu. Ce matériau a été approvisionné auprès de Cezus. La composition chimique de recette sur lingot est donnée dans le Tableau 1 ainsi que les spécifications pour ce type d'alliage. A réception, le diamètre interne de la gaine est de 8,35 mm et le diamètre externe de 9,50 mm.

Tableau 1 : Composition chimique de la gaine en Zircaloy-4 détendu.

	Sn	Fe	Cr	O	Zr
Spec.	1,20-1,50	0,18-0,24	0,07-0,13	0,10-0,15	bal.
Lingot	1,3	0,22	0,12	0,12	bal.

La simulation en laboratoire des conditions d'APRP consiste en une oxydation isotherme à haute température en vapeur suivie d'un refroidissement. Les études montrent que la cinétique d'oxydation en vapeur à haute température des tubes en alliage de zirconium est gouvernée par une loi parabolique [5]. Le gain de masse dû à l'oxydation en fonction de la durée d'oxydation est donné par :

$$\Delta w^2 = \delta^2 \cdot t \quad (1)$$

La constante δ^2 dépend de la température d'oxydation d'après une loi d'Arrhenius:

$$\delta^2 = A \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right)$$

Le niveau d'oxydation de la gaine peut être représenté par l'ECR (*Equivalent Cladding Reacted* en anglais). L'ECR est la proportion d'épaisseur oxydée en supposant que tout l'oxygène absorbé sert à la formation de la zircone ZrO_2 . L'ECR est calculé par la relation $ECR = 43,9 \cdot (\Delta w / e) \cdot (1 - e / D_0)$ pour l'oxydation simple-face, où l'ECR est en %, Δw est le gain de masse en g/cm^2 , e est l'épaisseur du tube en cm, D_0 est le diamètre extérieur du tube en cm [5].

Dans notre étude, les gaines sont oxydées à 1100°C et à 1200°C pour des ECR allant de 6% à 25%. Deux scénarii de refroidissement sont considérés : la trempe à l'eau et le refroidissement à l'air. L'oxydation et le refroidissement sont effectués dans le dispositif DEZIROX du CEA. Les tubes à oxyder font 150mm de long et sont bouchonnés aux 2 extrémités (oxydation simple-face). Le four résistif est chauffé à la température visée, et la vapeur circule sans limitation dans le four. L'oxydation s'effectue en introduisant les échantillons dans le four par un tube en alumine. Le niveau d'oxydation de la gaine est contrôlé par la durée d'oxydation. La durée d'oxydation pour un ECR visé a été déterminée à partir de données obtenues au CEA au cours d'oxydations sur le même type d'alliage dans le même dispositif. A l'issue de l'oxydation les échantillons soit sont retirés du four et refroidissent à l'air, soit tombent par gravité dans un bac d'eau qui permet d'effectuer une trempe. Après l'oxydation et le refroidissement, si une desquamation de la couche d'oxyde s'est produite, la partie desquamée est ramassée et les échantillons sont pesés pour mesurer le gain de masse dû à l'oxydation.

Les résultats d'oxydation sont montrés sur la Figure 3. La relation entre le gain de masse et la durée d'oxydation obéit bien à une loi parabolique (eq. 1) avec $\delta^2 = 0,4302 mg \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ pour 1100°C et $\delta^2 = 0,6131 mg \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$ pour 1200°C. Les ECRs réels obtenus à partir des gains de masse sont proches de ceux visés.

Une desquamation partielle de la couche d'oxyde est constatée pour les échantillons trempés et à fort ECR mais aucune gaine n'a rompu pendant la trempe. Il est à noter que l'échantillon oxydé à 1200°C à 10% d'ECR ne desquame pas alors que celui oxydé à 1100°C au même ECR desquame.

Les échantillons après l'oxydation et le refroidissement sont coupés et une observation de la section au microscope optique est effectuée. Les échantillons coupés sont enrobés à froid dans une résine puis polis.

La Figure 4 montre les observations effectuées pour deux niveaux d'ECR refroidis à l'air ou trempé à la température d'oxydation de 1100°C. La couche d'oxyde (ZrO_2) est sous forme colonnaire. Des microfissures radiales sont présentes dans la couche $\alpha(O)$. Il semble que les microfissures dans cette couche sont plus grandes dans les échantillons trempés que dans ceux refroidis à l'air. Des incursions de phase α dans l'ex- β sont visibles dans les échantillons trempés et dans les échantillons refroidis à l'air. La taille des incursions augmente avec l'ECR et peut atteindre l'échelle de l'épaisseur de la couche ex- β . Enfin, la phase ex- β des échantillons refroidis à l'air présente une structure à « lamelles ».

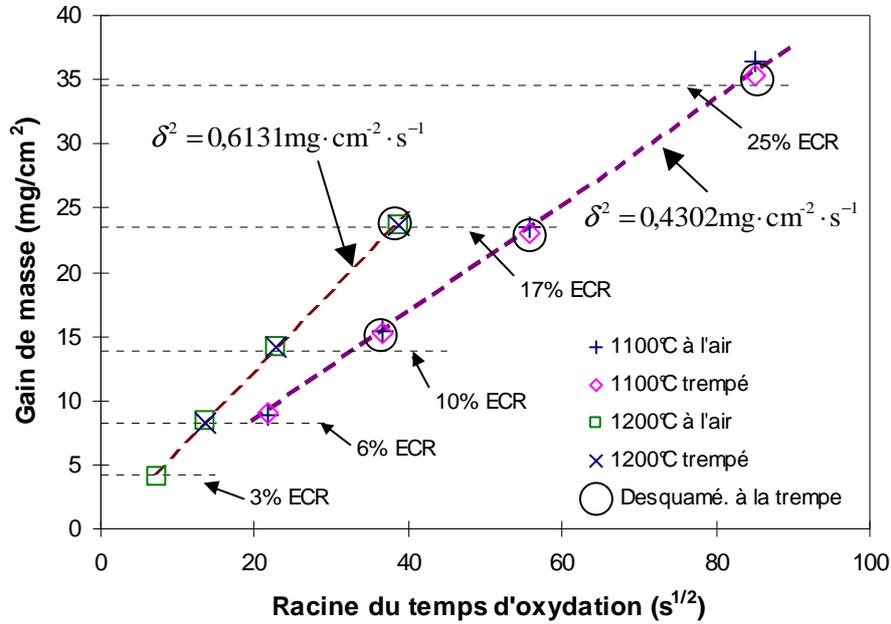


Figure 3 : Cinétique d'oxydation.

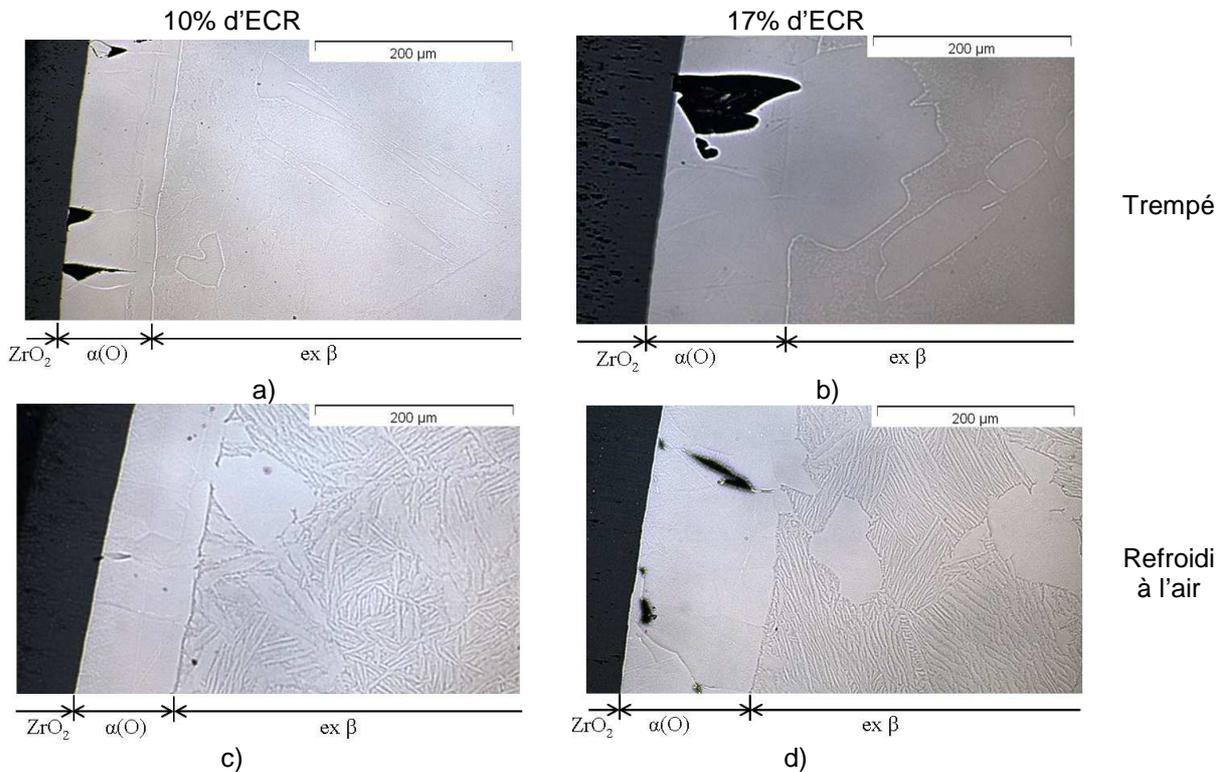


Figure 4 : Observation en microscopie optique après une oxydation à 1100°C - a) 10% d'ECR trempé, b) 17% d'ECR trempé, c) 10% d'ECR refroidi à l'air et d) 17% d'ECR refroidi à l'air.

Les épaisseurs des couches ex-β, α(O) et zirconne sont mesurées lors de l'observation. Il y a peu de différence sur les épaisseurs entre les gaines trempées et refroidies à l'air avec le même ECR. Les épaisseurs des couches ZrO₂ et α(O) et la comparaison avec les études antérieures sont montrées dans le Tableau 2. Il faut noter qu'il y a une grande variabilité dans les résultats des différentes études. Nos résultats sont dans la plage des ces résultats. Les épaisseurs de la couche α(O) sont en bon accord avec les résultats de Leistiklow [6].

Tableau 2 : Épaisseurs (μm) de ZrO₂ et de α(O) dans les gaines en Zircaloy oxydées et trempées.

ECR (%)	Temps oxy. (s)	Cette étude		Pawel [7]		Kawasaki[8]		Urbanic[9]		Leistiklow[6]	
		ZrO ₂	α(O)								
6	467	53	49	45	39	44	-	55	62	38	52
10	1349	79	87	76	67	75	-	94	105	65	89
17	3098	132	133	116	101	114	-	143	159	99	135
25	7243	192	208	177	154	174	-	218	243	151	206

Essai EDC

L'essai EDC consiste à comprimer par 2 pistons une pastille positionnée dans le tube. Le gonflement radial de la pastille entraîne l'expansion du tube. Les essais EDC ont été effectués à température ambiante sur une machine de traction comportant une cellule de 25kN. Les pistons qui viennent comprimer la pastille au sein du tube sont en acier et la pastille est en Téflon. Le diamètre des pistons est de 8,30 mm. Le diamètre interne des tubes de gaine oxydés/refroidis varie selon les conditions d'oxydation et de refroidissement. Des pastilles de téflon de diamètres allant de 8,30 à 8,40 mm ont été usinées pour s'adapter au mieux aux diamètres des tubes oxydés et refroidis. La hauteur de la pastille est de 12,5 mm et celle des tubes est de 25 mm. Le chargement de compression consiste en un déplacement de la traverse (soit du piston inférieur) à une vitesse imposée. Cette vitesse de déplacement traverse est choisie de manière à avoir une vitesse de déformation circonférentielle de l'ordre 10⁻⁴ s⁻¹.

Le déplacement de la traverse et la force de compression sont enregistrés pendant l'essai. De plus, les champs de déplacements et de déformations sont mesurés par stéréo-corrélation d'images. A cet effet, 2 caméras sont montées sur une barre de couplage stéréoscopique (Figure 5a) et acquièrent des images de la surface extérieure du tube. L'utilisation de deux caméras permet d'accéder à une information tridimensionnelle, l'information de profondeur étant obtenue par triangulation à partir de deux images ayant une partie commune dans leur champ de vue. La surface extérieure du tube est revêtue d'un mouchetis par projection de peinture (tâches noires sur un fond uniforme blanc). A l'issue de l'essai, le champ de déplacement et le champ de déformation sur la surface filmée sont calculés par le logiciel de stéréo-corrélation d'image Vic-3D[®]. La Figure 5b montre un exemple de champ de déformation circonférentielle calculé sur la surface externe au cours d'un essai.

Les courbes force/déplacement de l'essai EDC sur les tubes oxydés à 1100°C sont présentées sur la Figure 6. On distingue tout d'abord une étape de rattrapage du jeu initial entre le tube de gaine et la pastille en Téflon. Ensuite, les courbes présentent une montée linéaire. Les gaines se rompant dans cette montée linéaire ont un comportement fragile. D'autres gaines présentent à l'issue de cette montée linéaire une étape non-linéaire avant la rupture. L'étape non-linéaire est liée à la plasticité des gaines. Le comportement de ces gaines est ductile. Les courbes force/déplacement montrent qu'une augmentation de l'ECR diminue la ductilité : plus l'ECR est élevé plus la rupture intervient pour un déplacement imposé faible. Pour les 2 types de refroidissement les tubes à 6% d'ECR sont ductiles, et ceux à 17% et 25% sont fragiles. En revanche le tube à 10% d'ECR refroidi à l'air montre un signe de plastification alors que celui trempé rompt élastiquement.

Lors de la rupture une seule fissure axiale s'est propagée pour tous les essais menés. Une desquamation de la couche d'oxyde a lieu lors de la rupture des tubes trempés, alors que la couche d'oxyde des tubes refroidis à l'air reste intacte sauf dans le cas du tube de 6% d'ECR oxydé à 1100°C, où la zirconne autour de la fissure au siège de forte déformation circonférentielle est desquamée. La Figure 7 montre un exemple de fissure axiale dans des tubes à 10% d'ECR pour les deux conditions de refroidissement.

Un paramètre intéressant pour caractériser le comportement à rupture est la déformation circonférentielle maximale au cours de l'essai accessible grâce à la mesure de champ 3D effectuée. La zone où se trouve la

déformation circonférentielle maximale a principalement un chargement de traction circonférentielle. La déformation circonférentielle maximale à la rupture peut être considérée analogue à l'allongement à rupture pour un essai de traction, et représente donc un indicateur de ductilité. La Figure 8 montre l'évolution de la déformation circonférentielle maximale à rupture avec l'ECR. On voit une chute brutale de ductilité entre 6% et 10% d'ECR. De plus l'effet de fragilisation lié à la trempe sur la déformation circonférentielle à rupture semble plus prononcé pour les gaines oxydées aux bas ECR que pour les forts ECR (>10%).

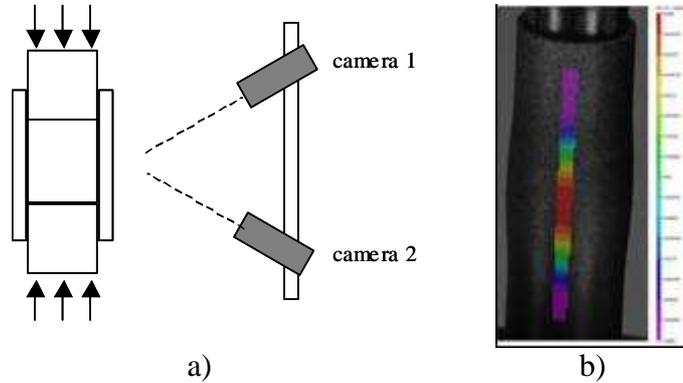


Figure 5 : Stéréo corrélation d'image. a) Système de 2 caméras, b) champ de déformation circonférentielle

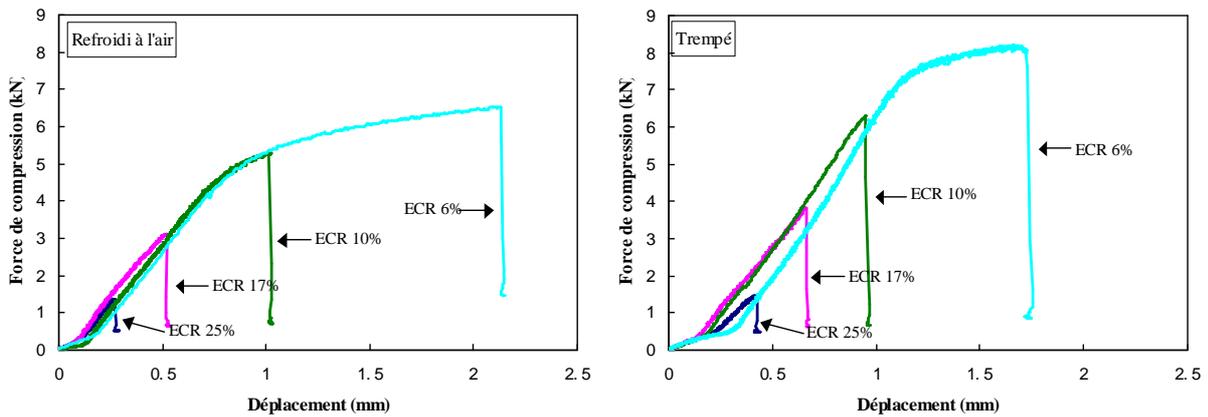


Figure 6 : Courbes force/déplacement de l'essai EDC sur des gaines oxydées/refroidies.

10% d'ECR trempée



a)

10% d'ECR refroidie à l'air



b)

Figure 7 : Gains oxydées/refroidies rompues pendant l'essai EDC. a) 10% d'ECR à 1100°C trempée, b) 10% d'ECR 1100°C refroidie à l'air.

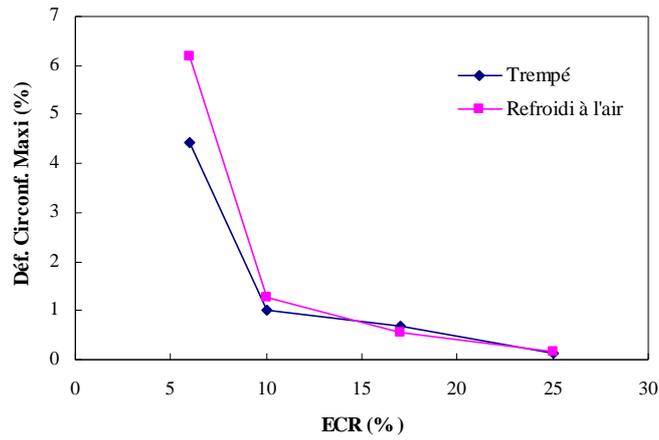


Figure 8 : Évolution de la déformation circonférentielle maximale à rupture pendant l'essai EDC.

Observations après l'essai EDC

Il est important de comprendre le mécanisme de rupture des tubes oxydés et refroidis pendant l'essai EDC. Pour cela, les tubes rompus sont observés au microscope électronique à balayage. Les premières observations ont été effectuées sur des tubes oxydés à 6% d'ECR et refroidis à l'air. La Figure 9 et la Figure 10 montrent les premières observations MEB de la couche externe de zircone ZrO_2 avant et après l'essai EDC. On constate que la microfissuration axiale de la zircone a lieu pendant l'essai EDC. En effet, ZrO_2 a un comportement mécanique très fragile, elle se rompt probablement tôt au cours de l'essai EDC sous l'effet de la contrainte de traction circonférentielle développée. L'observation du faciès de rupture de l'éprouvette de 6% d'ECR à 1100°C et refroidie à l'air (Figure 10) montre que la phase ex- β rompt de manière ductile et que la couche $\alpha(O)$ rompt de manière fragile.

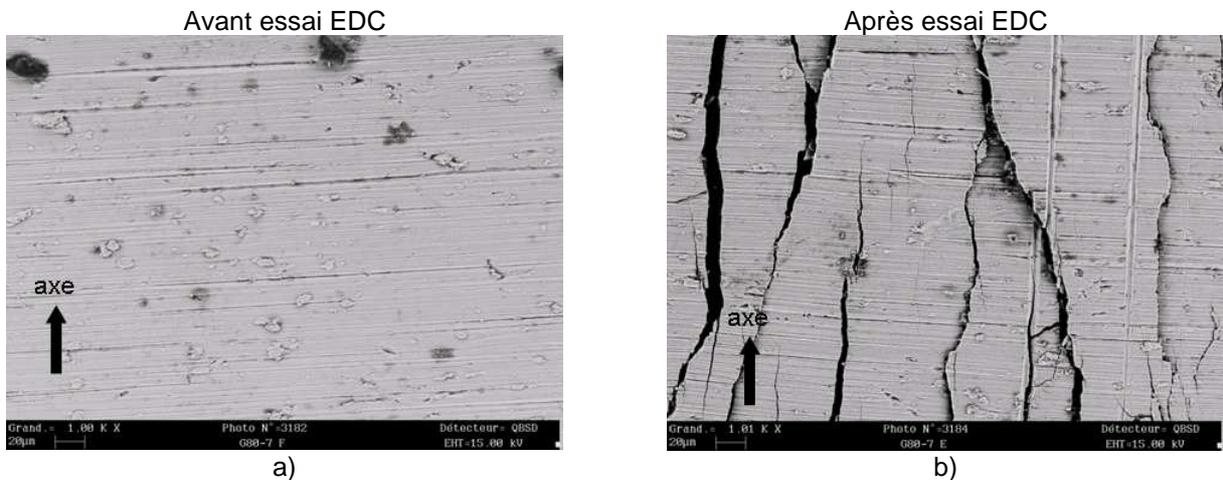


Figure 9 : Surface externe (ZrO_2) de la gaine oxydée à 6% d'ECR à 1100°C et refroidie à l'air. a) Avant l'essai EDC, b) après l'essai EDC.

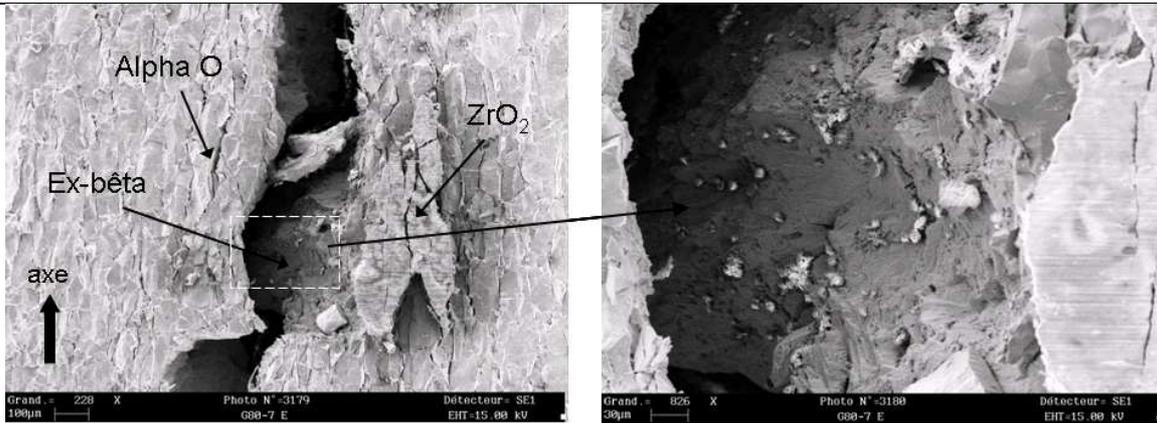


Figure 10 : Faciès de rupture de la gaine oxydée à 6% d'ECR à 1100°C et refroidie à l'air.

Simulation de l'essai EDC

Pour étudier le comportement mécanique des tubes oxydés et refroidis, l'essai EDC est simulé avec la méthode des éléments finis.

Dans un premier temps, on cherche à modéliser un essai effectué sur un tube vierge en Zircaloy 4 détendu. En prenant en compte l'axisymétrie de la géométrie et la symétrie par rapport au plan médian, des simulations axisymétriques sur un quart du plan générateur de l'essai sont effectuées. Les dimensions prises dans les simulations sont :

- longueur du tube de 25 mm,
- diamètre interne du tube de 8,35 mm,
- diamètre externe du tube de 9,50 mm,
- longueur de la pastille de 12,5 mm,
- diamètre de la pastille de 8,30 mm,
- longueur des pistons de 8,75 mm,
- diamètre des pistons de 8,30 mm.

La géométrie est maillée en utilisant des éléments quadrangle linéaires. Le maillage et les conditions aux limites sont montrés sur la Figure 11a.

Le tube en Zircaloy4 détendu est modélisé comme un matériau élasto-plastique avec écrouissage isotrope sans prendre en compte l'anisotropie de comportement classiquement observée sur ces alliages. Son comportement mécanique est déterminé à partir d'essais sous pression interne avec ou sans reprise de l'effet de fond. Les paramètres retenus sont $E=101$ GPa, $\nu=0,335$, $\sigma_y=450$ MPa et la loi d'écrouissage écrite en contrainte de von Mises en utilisant la relation entre la contrainte circonférentielle et la déformation circonférentielle est représentée Figure 11b.

La pastille en Téflon est aussi modélisée comme un matériau élasto-plastique isotrope avec écrouissage. Son comportement mécanique est déterminé à partir de l'essai de compression. Les paramètres retenus sont $E=600$ MPa, $\nu=0,45$, $\sigma_y=6,5$ MPa et la loi d'écrouissage écrite en contrainte de von Mises en utilisant la relation déformation/contrainte est montrée sur la Figure 11c.

Les pistons en acier sont considérés purement élastiques avec $E=200$ GPa et $\nu=0,33$.

Les simulations sont effectuées en grandes déformations et avec intégration complète. Les contacts tube/pastille et pastille/piston sont pris en compte dans la simulation. Les contacts sont simulés avec la formulation exacte, c'est-à-dire qu'aucune interpénétration n'est autorisée. Le frottement est modélisé avec la loi de Coulomb. Les coefficients de frottement sont a priori inconnus. Une étude paramétrique est effectuée pour les déterminer. Dans les simulations, des coefficients de 0 à 0,4 sont utilisés. Les courbes force/déplacement et les courbes force/déformation circonférentielle maximale de l'essai EDC et de la simulation sont comparées. Les résultats montrent que le coefficient de frottement pastille/piston a très peu d'influence sur ces courbes. En revanche l'augmentation du coefficient de frottement tube/pastille a un effet de durcissement sur les courbes (Figure 12). La comparaison avec les courbes expérimentales montre qu'un coefficient de frottement tube/pastille de 0,2 reproduit au mieux les courbes expérimentales jusqu'à une déformation circonférentielle maximale de l'ordre de 4%. L'écart entre les courbes simulées et

expérimentales lorsque le tube est assez plastifié peut être attribué au comportement plastique anisotrope du Zircaloy4 détendu qui n'est pas pris en compte ici.

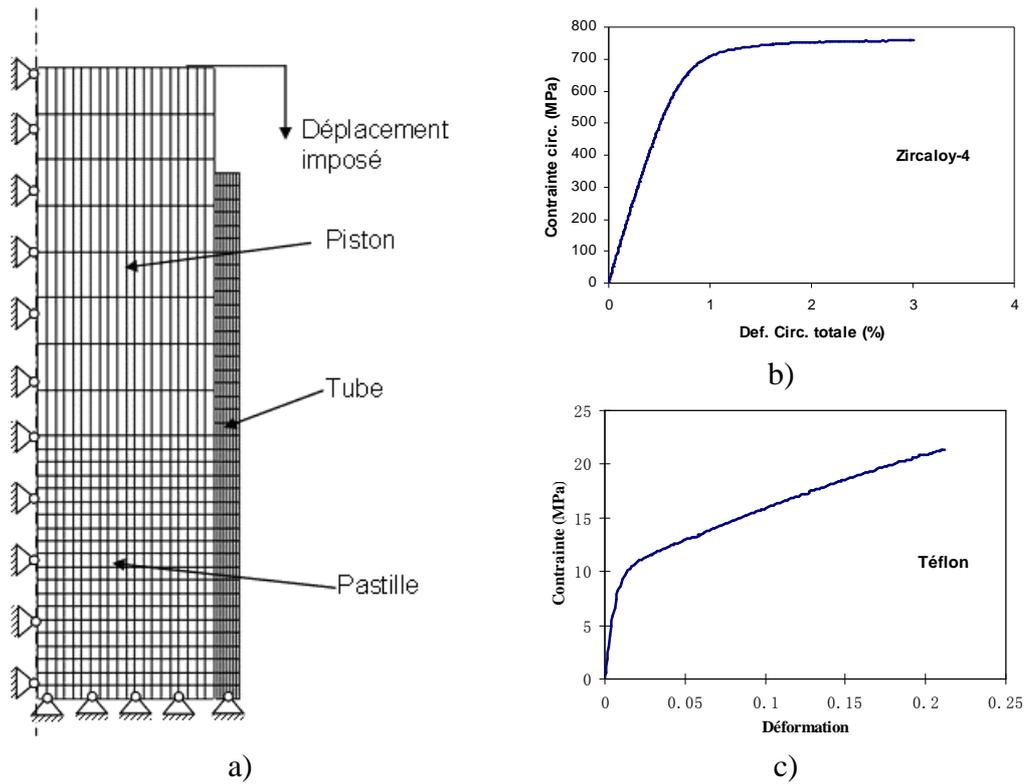


Figure 11 : a) Maillage et conditions aux limites des simulations de l'essai EDC. b) Courbe contrainte/déformation dans le sens circonférentiel issue de l'essai sous pression interne. c) Courbe contrainte/déformation du Téflon issue de l'essai de compression.

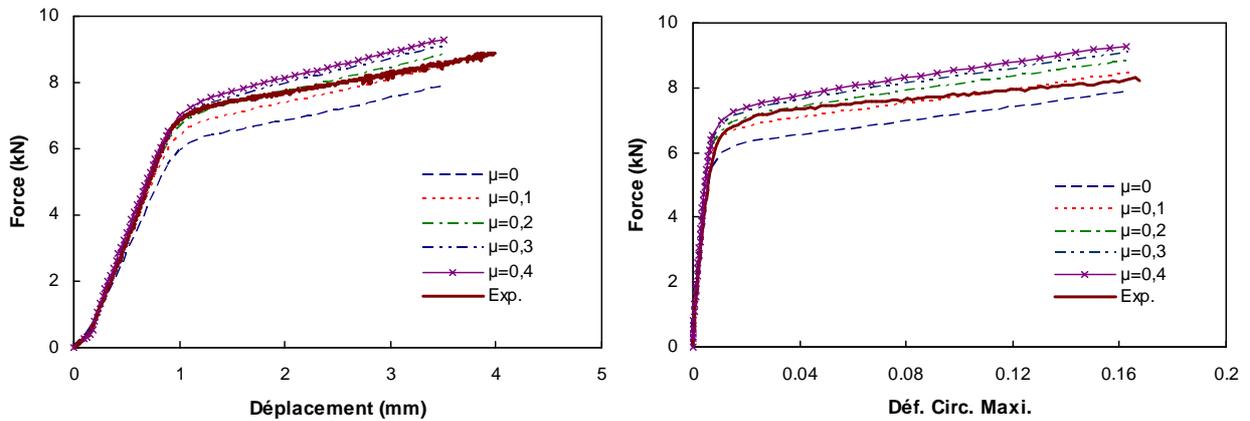


Figure 12 : Courbes force/déplacement et force/déformation circonférentielle maximale.

Puis, les essais EDC sur les gaines oxydées à 1100°C et trempées sont simulés. Pour effectuer les simulations, la connaissance des comportements mécaniques des différentes phases présentes dans la gaine est obligatoire. Stern a caractérisé le comportement mécanique des phases α - β à teneur en oxygène de 0,14% à 0,9% massique et α (O) à teneur en oxygène de 2% à 4% massique.[10]. Dans ses études, des plaques en alliages de zirconium sont oxydées à haute température puis subissent un traitement d'homogénéisation pour obtenir des phases homogènes. Ces plaques sont ensuite trempées à l'eau. Les comportements mécaniques des plaques sont caractérisés par les essais de traction et de flexion. Le module d'Young est caractérisé par méthode acoustique, nanodureté et nanoindentation. Pour les plaques fragiles le comportement mécanique est décrit par le module d'Young et la contrainte à rupture, et pour les plaques ductiles le comportement est complété par la limite d'élasticité et une loi d'écroutissement de type Ludwik :

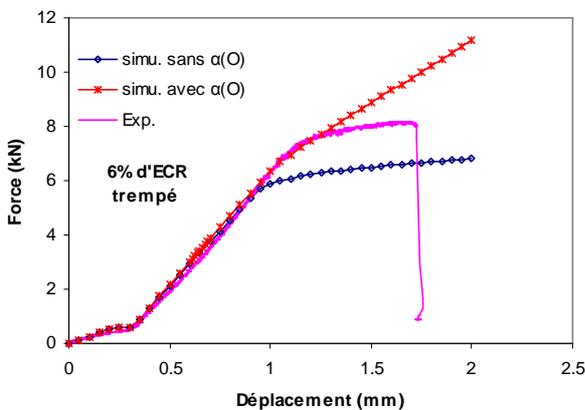
$$\sigma = \sigma_y + K \cdot (\varepsilon^p)^n \quad (2)$$

Les résultats de Stern montrent qu'à 20°C, le module d'Young de l'ex-β est à peu près constant et indépendant de la teneur en oxygène et qu'une transition ductile/fragile a lieu entre 0,5% et 0,7% massique d'oxygène.

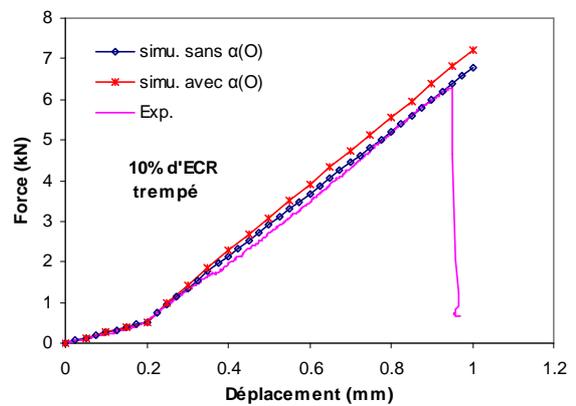
Pour simuler l'essai EDC, nous considérons que la couche de zircone ne contribue pas à la réponse des gaines dans l'essai EDC : elle n'est donc pas prise en compte dans les simulations. En effet, la couche de zircone des gaines à 10%, 17% et 25% d'ECR est déjà partiellement desquamée avant l'essai EDC, et la desquamation lors de la rupture implique sa faible cohésion à la couche d'α(O) même pour la gaine à 6% d'ECR. Par ailleurs, étant donné que la couche α(O) est micro-fissurée après l'oxydation et le refroidissement, des simulations avec la couche α(O) considérée saine et sans la couche α(O) sont effectuées. D'après la Figure 6, les gaines à 10%, 17% et 25% rompent dans le régime élastique, une modélisation élastique est utilisée pour la phase ex-β dans ces simulations. Pour la gaine à 6% d'ECR, la phase ex-β est modélisée par un comportement élasto-plastique. Les paramètres de comportement des gaines sont :

- α(O) saine : $E=200$ GPa, $\nu=0,35$
- ex-β : $E=111$ GPa, $\nu=0,35$. Pour la gaine à 6% d'ECR, la teneur en oxygène de la phase ex-β est de l'ordre de 0,2% massique [2]. Pour la teneur de 0,2%, d'après [10] les paramètres de loi Ludwik (eq. 2) sont $\sigma_y=670$ MPa, $K=215$ MPa, $n=0,15$.

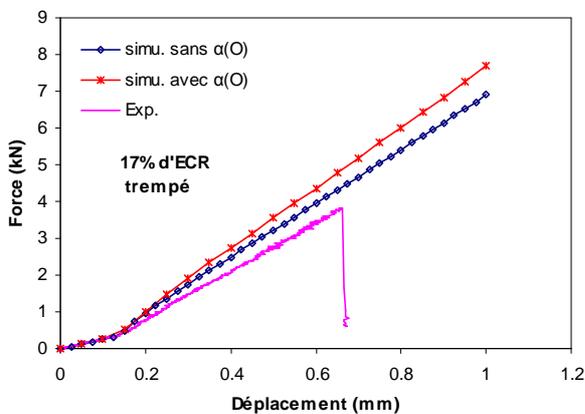
La même modélisation géométrique que celle utilisée dans les simulations sur gaine vierge est adoptée hormis le fait que la gaine contient 2 couches si l'α(O) est prise en compte. Les dimensions de la pastille, des pistons et la longueur des gaines sont les mêmes que dans les simulations sur gaine vierge. Les épaisseurs de l'ex-β et de l'α(O) prennent les valeurs mesurées par l'observation microscopique. Le jeu initial entre la pastille et le tube est déterminé à partir des longueurs de l'étape rattrapage de jeu des courbes force/déplacement issues de l'essai. Le coefficient de frottement pastille/tube est 0,2 et celui entre pastille/tube est 0.



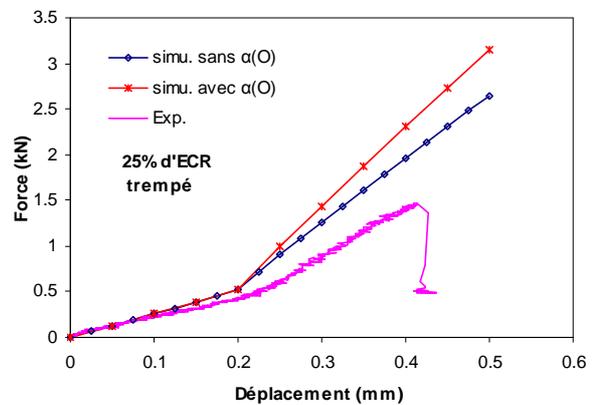
a)



b)



c)



d)

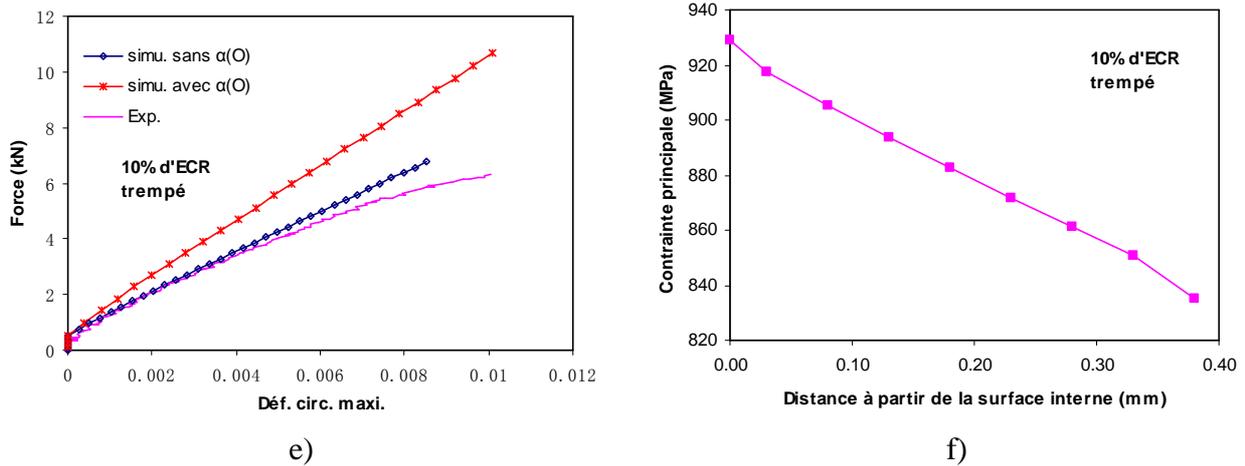


Figure 13 : Simulation de l'essai EDC sur les gaines oxydées et trempées, a) courbes force/déplacement de 6% d'ECR, b) courbes force/déplacement de 10% d'ECR, c) courbes force/déplacement de 17% d'ECR, d) courbes force/déplacement de 25% d'ECR, e) courbes force/déformation circconférentielle maximale sur la surface externe de 10% d'ECR, f) distribution de la première contrainte principale dans l'épaisseur de 10% d'ECR.

Les courbes force/déplacement (expérimentales et simulées) sont montrées sur les Figure 13a à Figure 13d. L'existence d'une couche de $\alpha(O)$ saine augmente légèrement la force de compression. D'après Stern la résistance à la rupture de la phase $\alpha(O)$ est de l'ordre 130 MPa pour 2% massique d'oxygène et de l'ordre de 40 MPa pour 4% d'oxygène [10]. Compte tenu de la microfissuration et de la faible résistance à la rupture de $\alpha(O)$, les courbes des simulations sans $\alpha(O)$ représentent mieux les essais. Cette considération est confirmée par la partie élastique de la courbe simulée pour la gaine à 6% d'ECR (Figure 13a) et la courbe pour celle à 10% d'ECR (Figure 13b). La partie plastique pour le 6% d'ECR est sous-estimée par la simulation. Cela peut impliquer que le comportement plastique utilisé dans la simulation n'est pas représentatif. Pour les 17% et 25% d'ECR, la réponse de la gaine est surestimée, et le niveau de la surestimation semble augmenter avec l'ECR (Figure 13c et Figure 13d). Cela pourrait être attribué aux incursions de $\alpha(O)$ de grande taille dans la couche ex- β qui sont négligées ici. En effet, des incursions pouvant faire toute l'épaisseur de la couche ex- β sont observées pour les gaines de 17% et 25% d'ECR. Pour ces gaines, le comportement mécanique de la couche ex- β peut être endommagé par la faible résistance à rupture des incursions de $\alpha(O)$. Ce point sera vérifié par la technique de nanoindentation sur la couche ex- β .

Pour la gaine de 10% d'ECR la déformation circconférentielle maximale sur la surface externe de la gaine est montrée sur la Figure 13e, cette déformation mesurée expérimentalement est bien représentée par la simulation sans $\alpha(O)$ lorsque le chargement est faible. Mais aux chargements élevés, l'endommagement de $\alpha(O)$ a tendance à faciliter la déformation de la couche $\alpha(O)$ dans le sens circconférentiel. La déformation réelle sur la surface externe de la couche $\alpha(O)$ est donc plus élevée. Dans la phase ex- β , la première contrainte principale trouve sa valeur maximale sur la surface intérieure au plan médian de l'essai, et diminue dans le sens de l'épaisseur (Figure 13f). La première contrainte principale maximale lors de rupture est d'environ 930 MPa. Cela implique que la rupture de la couche ex- β peut être déclenchée sur le diamètre interne. Mais d'autre part, la présence des fissures dans la couche $\alpha(O)$ peut entraîner la concentration de contrainte dans l'ex- β proche de l'interface ex- $\beta/\alpha(O)$. La rupture de la couche ex- β peut aussi être déclenchée par cette concentration de contrainte. Le mécanisme de rupture sera vérifié par la fractographie du faciès de rupture.

Conclusion et perspectives

Pour caractériser le comportement des gaines des crayons de combustible après un APRP, des gaines en Zircaloy-4 détendu sont oxydées en conditions isothermes en vapeur à 1100°C et 1200°C. Après l'oxydation, 2 scénarii de refroidissement (trempe à l'eau et refroidissement à l'air) sont effectués. La cinétique d'oxydation réelle est en bon accord avec celle prévue. Une desquamation de la couche d'oxyde des gaines trempées peut être observée mais aucune gaine n'est rompue pendant la trempe. L'observation au microscope de la coupe des gaines oxydées/refroidies révèle des fissures dans $\alpha(O)$ pour les gaines trempées et les gaines refroidies à l'air.

Les essais EDC sont effectués sur les gaines oxydées/refroidies. Les courbes force/déplacement révèlent des ruptures dans le régime élastique et des ruptures dans le régime plastifié. La transition ductile/fragile semble avoir lieu entre 6% d'ECR et 10% d'ECR pour les 2 types de refroidissement. L'observation au MEB des gaines s'étant rompues pendant l'essai EDC montre que la couche d'oxyde est microfissurée. Les 3 phases présentent différents modes de rupture.

Les simulations de l'essai EDC de la gaine vierge indiquent un coefficient de frottement de 0,2 entre la pastille et le tube. Les simulations sur les gaines oxydées à 1100°C et trempées montrent qu'il conviendrait de considérer les couches $\alpha(O)$ et zircone complètement endommagées. La montée linéaire des courbes force/déplacement est reproduite par la simulation pour les gaines de 6% et 10%.

Dans le travail à suivre, les propriétés mécaniques des 3 phases des gaines oxydées/refroidies seront déterminées par nano-indentation. La fractographie du faciès de rupture sera effectuée pour comprendre le mécanisme de rupture. Les gaines pré-hydrurées seront oxydées pour étudier l'effet de l'hydruration sur la gaine.

Remerciements

Les auteurs remercient le CEA, Service de Recherches Métallurgiques Appliquées, pour la réalisation des oxydations dans le dispositif DEZIROX.

References:

- [1] J. Brachet, J. Pelchat, D. Hamon, R. Maury, P. Jaques, and J. Mardon. Mechanical behavior at room temperature and metallurgical study of low-tin Zry-4 and M5TM (Zr-NbO) alloys after oxidation at 1100°C and quenching. *Proc. of IAEA Technical Committee Meeting on Fuel Behavior under Transient and LOCA Conditions*, Halden, Norway, 2001.
- [2] L. Portier, T. Bredel, J. Brachet, V. Maillot, J. Mardon, and A. Lesbros. Influence of Long Service Exposures on the Thermal-Mechanical Behavior of Zy-4 and M5TM Alloys in LOCA Conditions. *Journal of ASTM International*, vol. 2, Paper ID JA12468, 2005.
- [3] J. Brachet, V. Vandenberghe-Maillot, L. Portier, D. Gilbon, A. Lesbros, N. Waeckel, J. Mardon, M. Limback, B. Kammenzind, and S.W. Dean. Hydrogen Content, Preoxidation, and Cooling Scenario Effects on Post-Quench Microstructure and Mechanical Properties of Zircaloy-4 and M5[®] Alloys in LOCA Conditions. *Journal of ASTM International*, vol. 5, Paper ID JA101116, 2008.
- [4] V. Grigoriev, R. Jakobsson, and D. Schrire. Experimental evaluation of critical stain energy density for irradiated cladding under simulated RIA conditions. *Proceedings of ENS Topfuel*, Stockholm, 2001.
- [5] Nuclear fuel behaviour in loss-of-coolant accident (LOCA) conditions. Rapport NEA, 2009.
- [6] S. Leistikow, G. Schanz, and H.V. Berg. Kinetics and morphology of isothermal steam oxidation of Zircaloy-4 at 700-1300 C. Rapport KFK No. 2587, 1978.
- [7] R.E. Pawel, J.V. Cathcart, and R.A. McKee. The Kinetics of Oxidation of Zircaloy-4 in Steam at High Temperatures. *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 126, pp. 1105-1111, 1979.
- [8] S. Kawasaki, T. Furuta, and M. Suzuki. Oxidation of Zircaloy-4 under High Temperature Steam Atmosphere and Its Effect on Ductility of Cladding. *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 15, pp. 589-596, 1978.
- [9] V. Urbanic and T. Heidrick. High-temperature oxidation of zircaloy-2 and zircaloy-4 in steam. *Journal of Nuclear Materials*, vol. 75, pp. 251-261, 1978.
- [10] A. Stern. Comportement métallurgique et mécanique des matériaux de gainage du combustible REP oxydés à haute température. Thèse de Doctorat, Ecole des Mines de Paris, 2007.