

Chapitre 2

Les matériaux de gainage et leur tenue au RIA

Sommaire

2.1	Présentation du scénario RIA	10
2.1.1	Retour d'expérience provenant des essais en réacteurs	12
2.1.2	Critère analytique de tenue de la gaine	22
2.2	Le matériau de gainage	28
2.2.1	Choix du matériau de gainage et composition	28
2.2.2	Élaboration des produits de gainage	33
2.2.3	Texture, microstructure et mécanismes de déformation	36
2.3	Les produits de l'étude	41
2.3.1	Le Zircaloy-4 recristallisé	41
2.3.2	Les tôles de l'étude	41
2.4	Conclusions	45

Dans le cœur des Réacteurs nucléaires à Eau Pressurisée (REP), les gaines métalliques, contenant le combustible nucléaire à base d'uranium enrichi, sont les premières barrières de confinement des produits de fission. La conservation à tout instant de leur intégrité est une condition suffisante (on parle de critères de découplage) pour la sûreté des centrales. C'est ce cadre d'exigences en terme de sécurité que le comportement mécanique de la gaine lors d'un RIA fait l'objet de cette étude. Le déroulement de ce scénario hypothétique est présenté dans la suite du document.

2.1 Présentation du scénario RIA

Le RIA est un accident hypothétique initié par une perte de contrôle d'une grappe de commande¹ présentée sur la figure 2.1 (a.). On postule qu'une grappe est éjectée hors du cœur en raison de la différence de pression de l'ordre de 150 bars entre le circuit primaire et l'enceinte de pressurisation comme illustré sur la figure 2.1 (b.). Les crayons absorbants

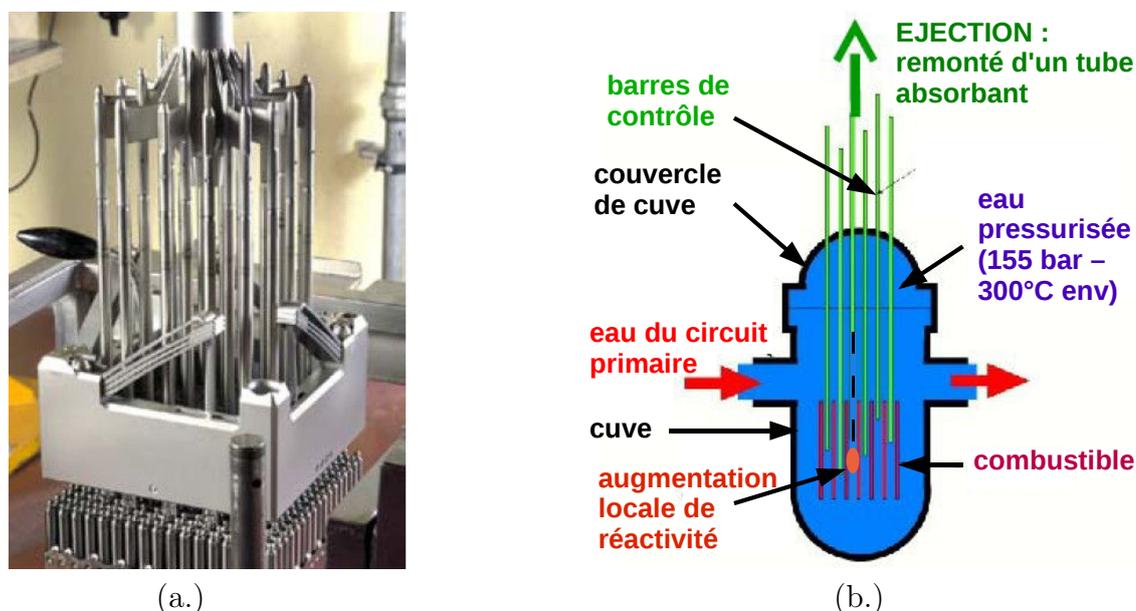


FIGURE 2.1: (a.) Image d'une grappe de commande (Ambard et al., 2010) (b.) Schéma de la cuve et de l'éjection des grappes de commandes http://rme.ac-rouen.fr/reaction_nucleaire.htm

éjectés ne jouent plus leur rôle neutrophage. Il en résulte une augmentation localisée et très rapide de la réactivité au niveau des crayons avoisinants. Dans ce régime critique, les

1. Les grappes de commande contiennent des matériaux fortement absorbants, c'est à dire avec une forte section efficace de capture des neutrons (Bore, Argent, Indium, Cadmium ...). Leur insertion dans le cœur permet de diminuer la réactivité. Ainsi, la réactivité est contrôlée par la profondeur d'insertion des grappes dans le cœur.

phénomènes complexes se développant au sein du crayon combustible induisent de fortes sollicitations thermo-mécaniques sur la gaine qui peuvent conduire à sa rupture comme illustré sur la figure 2.2 extraite des travaux de LeSaux (LeSaux, 2008).

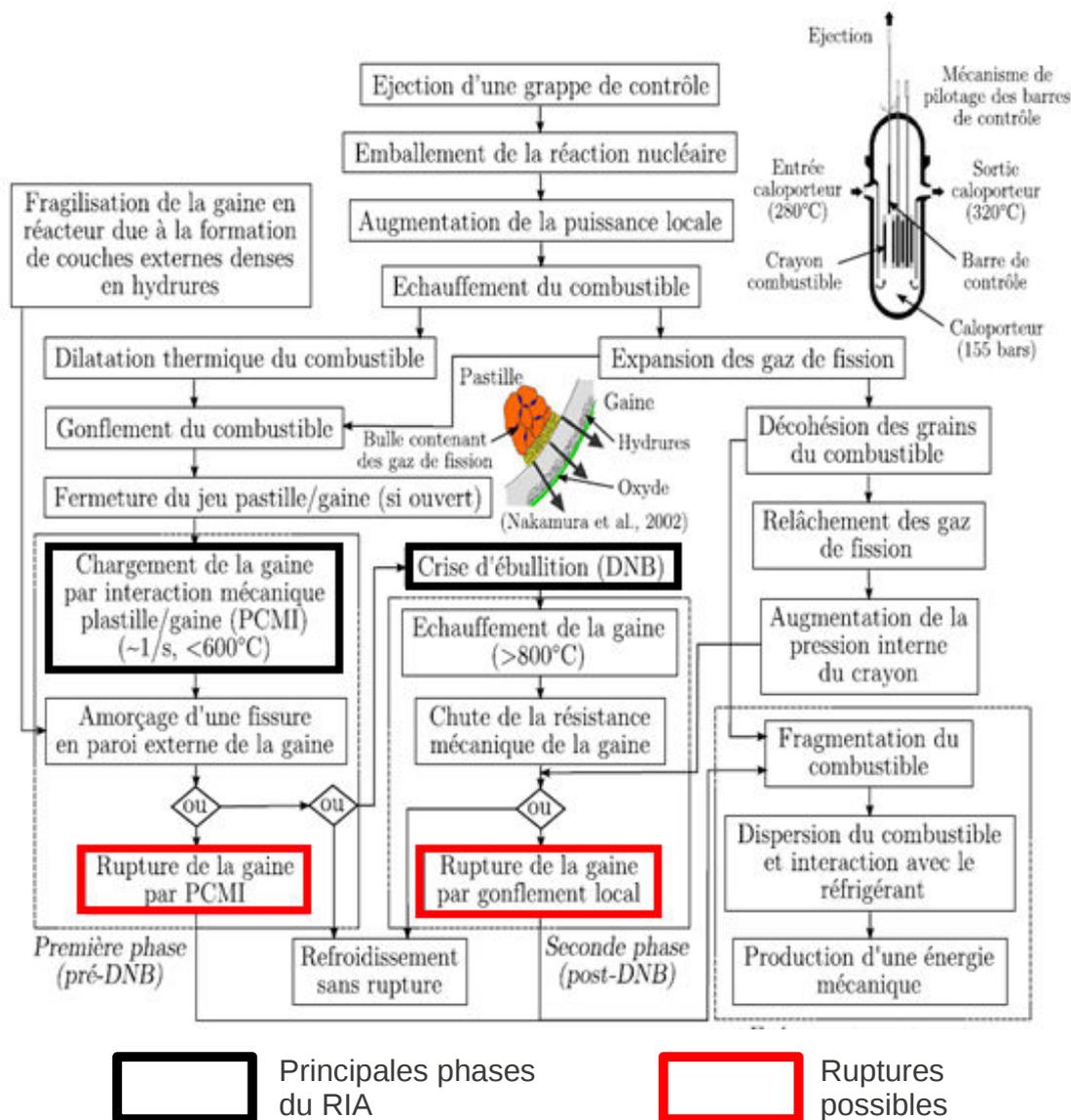


FIGURE 2.2: Schéma de principe des étapes pouvant conduire aux différentes ruptures liées à l'accident de RIA (LeSaux, 2008)

Pour modéliser le chargement thermo-mécanique subi par la gaine au cours du RIA, une compréhension plus aboutie du scénario accidentel est requise. Celle-ci est accessible par analyse de données expérimentales. Il s'agit de caractériser les conditions de sollicitation et d'identifier les facteurs physiques à l'origine de modifications du comportement de la gaine et des propriétés mécaniques liées à sa rupture. Dans un souci de conservatisme, c'est

l'environnement global le plus défavorable au regard de la perte d'intégrité du crayon qui doit être considéré.

Les essais intégraux RIA en réacteurs expérimentaux et les essais de laboratoire sur gaine plus conventionnels représentent la base de données à analyser.

- L'interprétation des essais réalisés en réacteurs expérimentaux (essais dit "intégraux") ont permis de comprendre l'enchaînement des phénomènes complexes mis en jeu lors d'un accident de RIA. Les conséquences locales mécaniques et physiques sur la gaine ont ainsi été caractérisées. Les critères de sûreté empiriques dédiés au RIA ont également été établis à partir de ces données.
- Les essais de laboratoire ont permis la compréhension fine des différents phénomènes mécaniques et physiques observés lors des essais intégraux de manière isolée (influence de la température, de la corrosion, de l'irradiation, de la texture cristalline ...). Ils constituent actuellement une base expérimentale de référence sur laquelle est basée la construction d'un critère de rupture analytique des gaines. À terme, le nouveau critère permettra une meilleure maîtrise des seuils présentant encore un degré d'empirisme.

2.1.1 Retour d'expérience provenant des essais en réacteurs

À partir des années 1970, des simulations expérimentales visant à reproduire les conditions du RIA (pour des raisons évidentes de sûreté, les essais ne sont pas réalisables en conditions réelles) ont été menées dans les réacteurs expérimentaux suivants :

- Special Power Excursion Reactor (SPERT) aux USA de 1969 à 1970 ;
- Power Burst Facilities (PBF) aux USA de 1978 à 1980 ;
- Pulse Graphite Reactor (IGR) aux Kazakhstan de 1990 à 1992 ;
- Fast Pulse Graphite Reactor (BIGR) en Russie de 1997 à 2000 ;
- Nuclear Safety Research Reactor (NSRR) au Japon depuis 1975 et arrêté depuis l'accident de Fukushima en mars 2011 ;
- CABRI en France de 1993 à 2002 et devant diverger à nouveau en 2015.

Les conditions de chargement subies par la gaine lors de ces essais sont présentées dans la suite du document. Il est également nécessaire de tenir compte de la fragilisation des gaines par l'hydruration, facteur physique aggravant la probabilité de rupture de ces dernières. L'influence de l'irradiation sur le matériau de gainage est également évoquée.

2.1.1.1 Chargement mécanique subi par la gaine lors du RIA

Lors d'un RIA, le comportement du crayon combustible se divise en plusieurs phases, reportées sur la figure 2.2, qui peuvent mener à la rupture de la gaine :

- **Phase I : Gonflement du combustible et interaction mécanique pastille gaine ("Pellet-Clad-Mechanical-Interaction", PCMI)**

Lors d'un accident de réactivité, l'injection d'énergie a lieu en quelques dizaines de millisecondes et est bien plus sévère qu'en conditions de démarrage du réacteur. L'augmentation brutale de la puissance conduit à une évolution quasi-adiabatique du combustible. Ainsi, la température de la pastille augmente et celle-ci se dilate brutalement pour venir en contact (cf. figure 2.3 (b.)), si ce n'est pas déjà le cas, avec la gaine plus froide (environ 300°C en fonctionnement nominal). La gaine s'échauffe à son tour par conduction et peut atteindre 600 °C. La vitesse d'augmentation de la température de la gaine est de près de 1000°C.s⁻¹ dans la phase de PCMI. Par ailleurs, les gaz de fission produits dans le combustible suite à la réaction nucléaire sont piégés dans l'oxyde d'uranium sous forme de microbulles. L'accroissement rapide de la température au sein de l'oxyde d'uranium est à l'origine de l'augmentation de la pression dans ces volumes de gaz qui se dilatent (Fuketa et al., 1997; Lemoine, 1997; Schmitz et Papin, 1999). Sous l'effet de cette pression, la pastille se fragmente.

À ces températures, la gaine présente un comportement viscoplastique et se déforme pour épouser la géométrie imposée par les pastilles comme illustré sur la figure 2.3 (c.). La dilatation rapide de la pastille, contrôlée par les caractéristiques du transitoire de puissance, est alors instantanément transférée à la gaine et impose les conditions de chargement (vitesse de déformation, multiaxialité du chargement) pouvant être à l'origine de la rupture du crayon. La gaine est donc sollicitée en déplacement imposé, ce qui correspond à un mode de déformation stable.

L'interaction mécanique pastille/gaine est alors forte et la gaine est soumise à un chargement thermo-mécanique multiaxié (Fuketa et al., 1996; Schmitz et Papin, 1999), caractérisé par une combinaison entre traction circonférentielle (direction \vec{e}_θ) et axiale (direction \vec{e}_z). Le rapport de biaxialité des déformations axiale et circonférentielle $\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta}$ s'étend entre 0 et 1 en fonction des conditions de contact à la frontière pastille/gaine. Lors des transitoires les plus sévères (en termes de taux d'augmentation de la puissance injectée) la vitesse de déformation circonférentielle appliquée à la gaine peut atteindre de 1 à 5 s⁻¹.

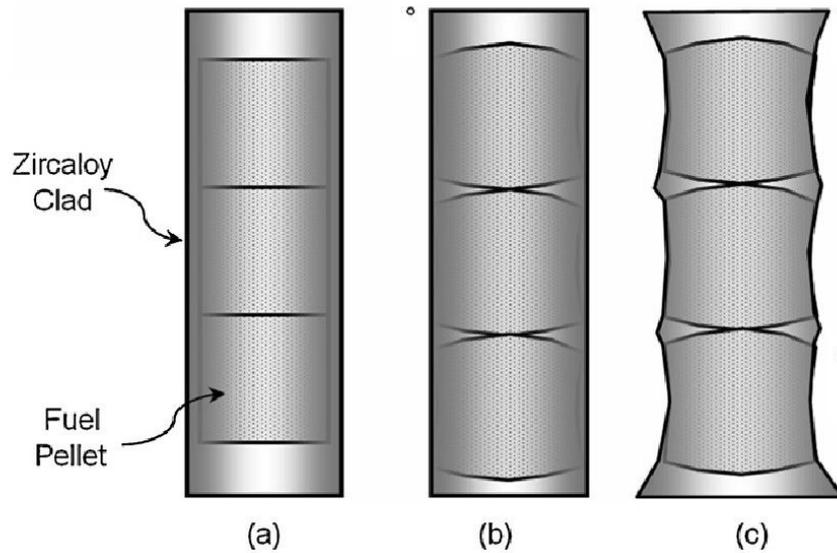


FIGURE 2.3: Schéma de principe des étapes de l'instauration du PCMI (Alam et al., 2011) : (a) schéma du crayon combustible dans son état initial ; (b) schéma du crayon combustible après fermeture du jeu pastille/gaine ; (c) schéma du crayon combustible après mise en diabolo de la gaine

– **Phase II : Crise d'ébullition ("Departure of Nucleate Boiling", DNB)**

Si des conditions favorables sont réunies dans la phase de PCMI (viscosité assez importante de la gaine et contrainte PCMI assez basse), la rupture n'est pas consommée et une seconde phase doit être considérée. L'augmentation de la température dans la gaine en contact avec le combustible chaud continue. L'eau caloporteuse à proximité de la gaine est alors portée à ébullition (DNB, Departure of Nucleate Boiling). Le film de vapeur d'eau formé en surface extérieure de la gaine limite son refroidissement. Celle-ci peut alors atteindre localement $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ durant 10 à 15 secondes. Dans la phase de DNB, la gaine très chaude voit sa contrainte d'écoulement diminuer. Par ailleurs, la fragmentation de la pastille lors du PCMI est à l'origine du relâchement des gaz de fission (en anglais ce phénomène est désigné par Fission Gas Release, FGR) de la matrice d' UO_2 vers les volumes libres du crayon. Les FGR sont d'autant plus favorisés que la température du combustible augmente. En fin de transitoire, lorsque la température des pastilles est maximale, les gaz appliquent alors une pression importante sur les parois intérieures de la gaine. L'augmentation de la viscosité de la gaine conjuguée au chargement en pression interne par les gaz de fissions peuvent conduire au ballonnement local du crayon et par extension à sa rupture par éclatement. La rupture serait due à un écoulement plastique instable piloté soit en contrainte imposée soit en quantité de gaz imposée. La condition mécanique de chargement réelle n'est pas encore tranchée. La seconde hypothèse est moins sévère que la première, des investigations complémentaires sont à mener afin

d'éclaircir ce point. En phase de DNB, la gaine voit un chargement mécanique en déformation plane.

Évolution de la biaxialité du chargement lors du RIA

Les deux différents régimes PCMI et DNB respectivement associés au début et à la fin du RIA, exposent la gaine à des sollicitations mécaniques différentes. Il faut ainsi s'attendre à une évolution progressive du chargement et de l'état mécanique de cette dernière au cours du transitoire. C'est par la mesure des déformations axiale et circonférentielle résiduelles en fin des essais intégraux RIA, réalisés dans les réacteurs CABRI et NSRR, que cette évolution a pu être étudiée.

Dans le réacteur CABRI, du sodium liquide assurait jusqu'ici (une boucle à eau est en cours d'installation) le refroidissement des crayons. Pour les essais CABRI REP-Na, la crise d'ébullition du sodium n'a jamais été atteinte, contrairement aux essais réalisés dans le réacteur NSRR utilisant de l'eau comme liquide modérateur. Par conséquent, le chargement par PCMI joue un rôle prépondérant pour les essais d'injection de réactivité CABRI REP-Na car la température de la gaine demeure dans la gamme basse des températures typiques du RIA. En revanche, en comparaison des essais CABRI, la température de gaine atteinte lors des essais NSRR est plus importante. De nombreux essais ont d'ailleurs atteint la phase de DNB.

Les résultats CABRI et NSRR reportés sur la figure 2.4, montrent que le rapport de biaxialité des déformations $\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta}$ est dépendant de la viscosité du matériau de gainage et donc par extension de sa température (OCDE, 2000). Plus la déformation circonférentielle est faible, plus le rapport des déformations est proche de l'unité ($\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta} \approx 1$). L'état de déformation de la gaine est proche de l'équibiaxialité selon les directions circonférentielle et axiale ($\epsilon_{zz} \approx \epsilon_{\theta\theta}$). À l'inverse, pour les deux essais NSRR pour lesquelles la phase DNB a été atteinte, la déformation circonférentielle résiduelle est plus importante et le rapport des déformations cumulées au cours du chargement est proche de zéro ($\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta} \approx 0$). La gaine est sujette à un état de déformations planes selon la direction axiale ($\epsilon_{zz} \approx 0$). Ces résultats suggèrent qu'en début de transitoire (chargement purement en PCMI), lorsque le seuil de plasticité de la gaine vient d'être dépassé et que les déformations plastiques sont très faibles, l'état de déformation de la gaine est équibiaxial ($\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta} = 1$). Puis, progressivement avec l'augmentation de température de la gaine et du combustible, la pression des gaz de fission sur le tube devient le chargement prédominant. Comme la gaine se déforme plastiquement, les déformations circonférentielles sont plus importantes. Le trajet de chargement tend alors vers un mode de sollicitation contraignant la gaine suivant un état de déformations planes ($\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta} = 0$).

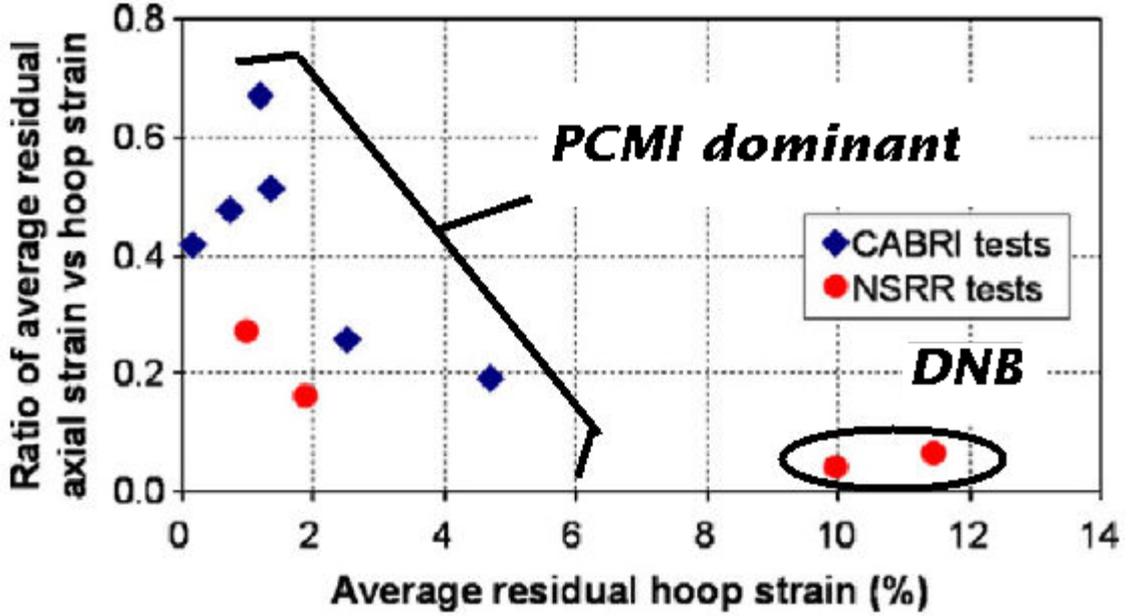


FIGURE 2.4: Rapport de déformation ($\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta}$) en fonction de la déformation circonférentielle ($\epsilon_{\theta\theta}$) pour les essais intégraux NSRR et CABRI RIA. Figure tirée de l'article (Desquines et al., 2011) réalisée à partir des études de (Papin et al., 2007; Fuketa et al., 1996; Ishijima et Fuketa, 1996; Fuketa et al., 1999; Fuketa et al., 2000)

Si les déformations sont mesurables, ce n'est pas le cas des contraintes. Néanmoins, le rapport de biaxialité des contraintes axiale et circonférentielle $\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta}$ est calculé à partir des déformations mesurées moyennant certaines hypothèses très simplificatrices sur la loi de comportement et l'état de chargement.

- Seules les contraintes axiales σ_{zz} et tangentielles $\sigma_{\theta\theta}$ sont considérées significatives. En effet, la structure est assimilée à une tôle mince et l'état de chargement est assimilé à un état de contraintes planes. Le tenseur des contraintes de Cauchy se simplifie de la façon suivante :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \begin{pmatrix} \approx 0 & \approx 0 & \approx 0 \\ \approx 0 & \sigma_{\theta\theta} & \approx 0 \\ \approx 0 & \approx 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix}_{(r,\theta,z)} \quad (2.1)$$

- Bien que le matériau présente une anisotropie plastique non négligeable, le comportement est supposé isotrope pour faciliter l'expression du calcul du rapport de biaxialité des contraintes axiale et circonférentielle. En considérant un critère de von-Mises (Mises, 1913), la loi de normalité est appliquée et impose que le taux de déformation plastique soit proportionnel à la partie déviatorique $\underline{\underline{\sigma}}'$ de $\underline{\underline{\sigma}}$ exprimée par :

$$\underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^p = \dot{\lambda} \cdot \underline{\underline{\sigma}}' \quad (2.2)$$

Avec $\dot{\lambda}$ un multiplicateur scalaire.

Le rapport des taux de déformation plastique dépend alors seulement des composantes σ_{zz} et $\sigma_{\theta\theta}$.

$$\begin{pmatrix} \dot{\epsilon}_{rr}^p \\ \dot{\epsilon}_{\theta\theta}^p \\ \dot{\epsilon}_{zz}^p \end{pmatrix}_{(r,\theta,z)} = \frac{\dot{\lambda}}{3} \begin{pmatrix} -\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{zz} \\ 2\sigma_{\theta\theta} - \sigma_{zz} \\ 2\sigma_{zz} - \sigma_{\theta\theta} \end{pmatrix}_{(r,\theta,z)} \quad (2.3)$$

En considérant un chargement proportionnel avec le temps, il peut être établi la relation suivante :

$$\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta} = \frac{1 + 2\varepsilon_{zz}^p/\varepsilon_{\theta\theta}^p}{2 + \varepsilon_{zz}^p/\varepsilon_{\theta\theta}^p} \quad (2.4)$$

À partir de cette formulation, la relation entre biaxialité des déformations et biaxialité des contraintes est représentée en trait plein sur la figure 2.5 tirée de la synthèse de (Desquines et al., 2011). Les données des essais CABRI et NSRR sont reportées sur la figure et le rapport de biaxialité des contraintes axiale et circonférentielle est compris entre 0,7 et 0,5. À cette

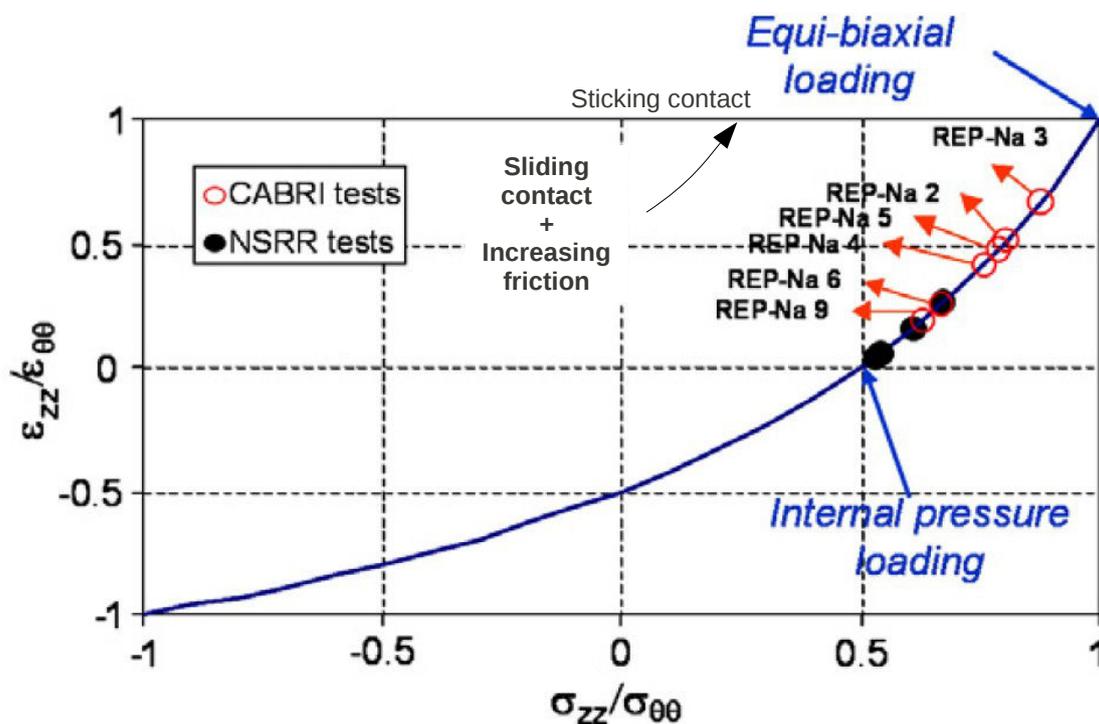


FIGURE 2.5: Rapport des déformations ($\varepsilon_{zz}/\varepsilon_{\theta\theta}$) en fonction du rapport des contraintes ($\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta}$) pour une série d'essais conduit dans les réacteurs expérimentaux NSRR et CABRI (Desquines et al., 2011)

évolution des contraintes correspond une évolution de la déformation due aux hypothèses

formulées. Ainsi, dans le cas du RIA les deux états de déformation englobant la gamme d'évolution réaliste pour le RIA, sont identifiés.

- Pour un état de déformations équi-biaxiées ($\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta} = 1$) associé au chargement purement en PCMI en début de transitoire, la biaxialité de contrainte est égale à 1 ($\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta} = 1$) selon l'équation 2.4.
- Pour un état de déformations planes ($\epsilon_{zz}/\epsilon_{\theta\theta} = 0$) associé au chargement en pression interne par les gaz de fission observé lors de la phase DNB, la biaxialité de contrainte est égale à 0,5 ($\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta} = 0,5$) selon l'équation 2.4. Ce rapport de 0,5 peut être justifié par calcul géométrique. Dans cette configuration, les conditions expérimentales correspondent à celles appliquées lors d'un essai de pression interne sur tube bouché en ses extrémités. Pour assurer la condition $\epsilon_{zz} = 0$, une reprise d'effet de fond doit être imposée. Dans ce cas particulier, il s'agit de contraindre la position des deux extrémités du tube à l'immobilité selon la direction axiale (figure 2.6).

La contrainte axiale est exprimée selon :

$$F_{zz} = P S_1 \quad ; \quad \sigma_{zz} = \frac{F_{zz}}{S_2} = P \frac{S_1}{S_2} \quad , \quad (2.5)$$

avec,

$$S_1 = \pi(R - e)^2 \quad \text{et} \quad S_2 = \pi R^2 - \pi(R - e)^2 \quad . \quad (2.6)$$

e et R correspondent respectivement à l'épaisseur et au rayon extérieur du tube tels qu'illustrés sur la figure 2.6. Pour une gaine "type", utilisée en centrale, e est très petit devant R ($e \approx 0,57$ mm et $R \approx 4,75$ mm). Aussi, l'évolution des aires, dû à la déformation selon l'épaisseur du tube au cours du chargement, est négligée.

La contrainte circonférentielle est exprimée selon :

$$F_{\theta\theta} = P S'_1 \quad ; \quad \sigma_{\theta\theta} = \frac{F_{\theta\theta}}{S'_2} = P \frac{S'_1}{S'_2} \quad , \quad (2.7)$$

avec,

$$S'_1 = 2 \times l \times R \quad \text{et} \quad S'_2 = 2 \times l \times e \quad . \quad (2.8)$$

l correspond à la longueur axiale du tube.

Il en résulte le rapport entre contrainte axiale et circonférentielle exprimé en fonction des dimensions de la gaine :

$$\begin{aligned} \frac{\sigma_{zz}}{\sigma_{\theta\theta}} &= \frac{S_1 S'_2}{S_2 S'_1} \\ &= \frac{e(R - e)^2}{R(R^2 - (R - e)^2)} \\ &= \frac{eR^2 + e^3 - 2R^2 e}{2R^2 e - e^2 R} \quad ; \quad e^3 \text{ négligé} \\ &\approx \frac{R}{2R - e} \quad , \end{aligned} \quad (2.9)$$

$$\frac{\sigma_{zz}}{\sigma_{\theta\theta}} = \frac{S_1 S_2'}{S_2 S_1'} \approx \frac{R}{2R+e} \approx 0,5 ; e \ll R . \quad (2.10)$$

Le rapport de contrainte $\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta}$ obtenu par le calcul est de l'ordre de 0,5. Aussi, le résultat issu de l'équation 2.4 est retrouvé.

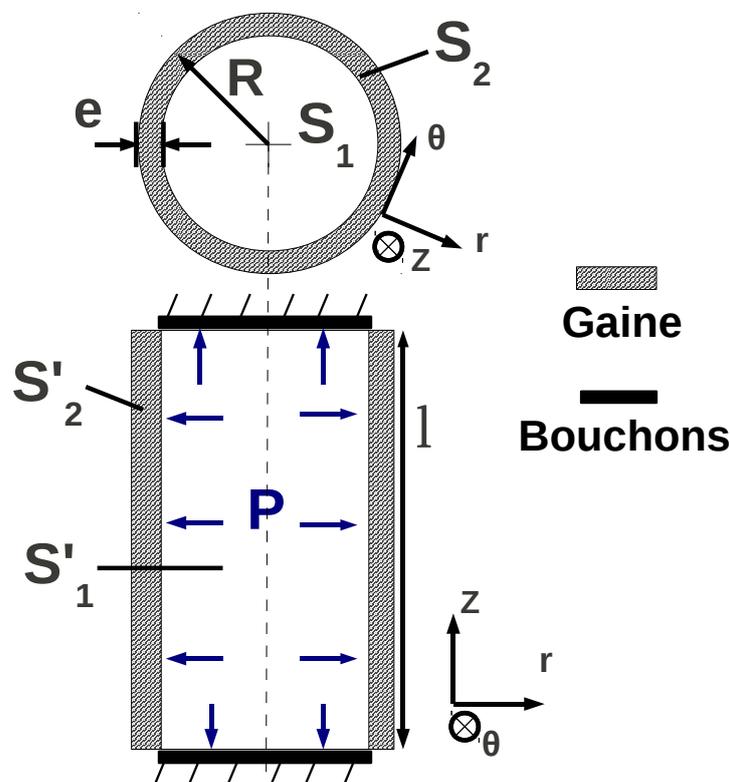


FIGURE 2.6: Schéma des notations adoptées pour évaluer le chargement en pression interne d'un tube bouché en ses deux extrémités et sollicité en déformations planes

Entre ces deux états, une multitude de chargements biaxiés est susceptible d'être rencontrée au cours du transitoire comme le suggère les points de mesures des essais intégraux disséminés tout du long de cette portion de courbe. Ainsi, l'influence de la multiaxialité du chargement sur le comportement de la gaine doit être caractérisée pour être intégrée aux modèles mécaniques dédiés au RIA.

2.1.1.2 Phénomènes physiques impactant le comportement et la tenue de la gaine

Les gaines en environnement REP sont soumises à des évolutions microstructurales qui peuvent jouer sur les propriétés physiques du crayon. Ces évolutions sont importantes pour notre étude dès lors qu'elles sont à l'origine de modifications du comportement mécanique

de la gaine et/ou de sa tenue. Les effets liés aux évolutions principales que sont l'hydruration et l'irradiation sont succinctement évoqués dans la suite.

Fragilisation par les hydrures

Durant tout le cycle de fonctionnement, un processus d'oxydation forme de l'hydrogène ainsi qu'une couche d'oxyde de Zirconium (ZrO_2) à la surface extérieure de la gaine (Motta, 2011) suivant la réaction :



5 à 25% de la totalité de l'hydrogène produite pénètre dans le métal. Durant la période de fonctionnement nominale et à cause du gradient thermique existant dans le tube (partie intérieure en contact avec le combustible chaud et partie extérieure en contact avec l'eau froide), l'hydrogène absorbé diffuse vers les zones froides (Sawatzky, 1960) et s'accumule sous la couche d'oxyde. À cause de la limite de solubilité basse dans le Zircaloy, l'hydrogène ségrége précipite sous la forme d'un RIM (Acronyme anglais signifiant Restructurized Irradiated Microstructure) d'hydrures à la périphérie extérieure de la gaine (Motta et Chan, 2012).

Les hydrures et l'hydrogène en solution solide ont une influence à la fois sur le comportement et sur la rupture.

- À basse température, les hydrures sont plus durs que la matrice, ce qui induit un effet composite. L'incompatibilité de déformation plastique engendrée entre la matrice et les hydrures a pour conséquence de renforcer le matériau et d'augmenter sa capacité d'écroutissage. La limite d'élasticité est peu perturbée. En revanche, la contrainte maximale est d'autant plus élevée et l'allongement réparti est d'autant plus faible que la teneur en hydrogène est importante (Grange, 1998; Doan, 2009; LeSaux et al., 2010; Wang et al., 2013). Néanmoins, le renforcement s'atténue avec l'accroissement de la température (Yagnik et al., 2004; LeSaux, 2008; Doan, 2009).
- La fragilisation de la gaine par les hydrures favorise l'initiation de fissures au début du transitoire lorsque la gaine est encore à basse température. Lorsque des fissures sont observées au niveau de la gaine, elles sont préférentiellement localisées dans les zones débouchantes, en contact avec l'eau de refroidissement, lieu de la fragmentation de la couche d'oxyde. Ces fissures initiées dans des zones de la gaine peu ductiles, augmente sa probabilité de rupture au cours de l'accident.

Défauts d'irradiation

Les dommages d'irradiation dans les gaines en alliage de zirconium à 300°C sont principalement : la formation de défauts ponctuels ; de petite boucles (boucles $\langle a \rangle$ pour les premiers stades d'irradiation et boucles $\langle c \rangle$ apparaissant à forte fluence) et de courts segments de dislocation ; ainsi que des enchevêtrements de ces dislocations. Ces défauts (notamment les nombreuses petites boucles de dislocations $\langle a \rangle$) tendent à durcir le matériau en

entravant le mouvement des dislocations à l'origine de la déformation plastique (Northwood, 1977; Northwood *et al.*, 1977a; Griffiths, 1988; Lemaignan et Motta, 1994; Adamson, 2000). Aussi, la contrainte d'entrée en plasticité augmente avec la densité des boucles $\langle a \rangle$ (Adamson et Bell, 1985). En revanche, l'irradiation diminue la ductilité apparente du matériau par localisation précoce de la déformation, à l'échelle macroscopique, dans les bandes de cisaillement (Williams *et al.*, 1974; Regnard *et al.*, 2002). Néanmoins, à haute température, les défauts d'irradiation sont recuits et une partie de la ductilité est recouvrée. Cette annihilation est fortement dépendante du temps, de la température ou encore de la contrainte appliquée (Ribis *et al.*, 2008). Pour une température supérieure à 600 °C, il suffit de 10 à 15 secondes pour que la quantité des défauts d'irradiation recuits soit significative (Tomimura *et al.*, 1996). Dans le cas du RIA, ce phénomène est susceptible de se produire durant la crise d'ébullition en fin de transitoire (Tomimura *et al.*, 1996).

Oxydation, temps d'irradiation, température

Il est désormais clair que les deux phases de chargement caractéristiques du chargement appliqué à la gaine au cours d'un RIA sont le PCMI et le post-DNB. Chacune de ces deux phases peut mener la gaine à la rupture si celle-ci a vu ses propriétés mécaniques se dégrader au cours de sa vie en réacteur. Ces deux types de ruptures n'ont pas la même probabilité d'occurrence suivant le taux de combustion étudié² (cf. figure 2.7). C'est la rupture par PCMI qui est la plus discriminante dans le cas des taux de combustion supérieurs à 30 GWj/tU tandis que la rupture post-DNB est plus susceptible de se produire pour des crayons peu irradiés. À hauts taux de combustion (long séjour en réacteur) les gaines fragilisées par l'oxydation et l'irradiation sont plus susceptibles de rompre à basse température en début de transitoire sous un chargement par PCMI. À l'inverse pour des taux de combustion faibles, les gaines sont moins fragilisées et sont plus susceptibles de rompre à haute température par écoulement plastique instable (phase post-DNB). Les enjeux de sûreté tendant actuellement vers la compréhension fine du comportement des gaines pour des hauts taux de combustion, ce sont les conditions de rupture par PCMI qui sont les moteurs des nouveaux programmes de recherche sur le RIA. Pour cette raison, la présente étude sera restreinte aux conditions mécaniques et thermiques rencontrées lors de la phase de PCMI (notamment des températures inférieures à 600°C).

2. Le taux de combustion rend compte de la quantité d'énergie (plus précisément une énergie massique) extraite d'un assemblage, c'est-à-dire des gigawatts jours, par tonne de métal lourd (Uranium). Cette quantité représente l'intégrale dans le temps de la puissance générée par unité de masse métallique. Malgré son nom, il ne s'agit pas d'un taux de combustion à un instant donné mais d'une combustion cumulée (Puissance cumulée pour une tonne d'Uranium) sur une période donnée. Le terme "épuisement", moins couramment utilisé mais équivalent dans la portée sémantique, peut être utilisé et définit le cumul dans le temps du nombre relatif de noyaux disparus par fission. L'unité est alors le % de noyaux initiaux. En règle générale plus le séjour en réacteur du crayon combustible est long, plus le taux de combustion est important.

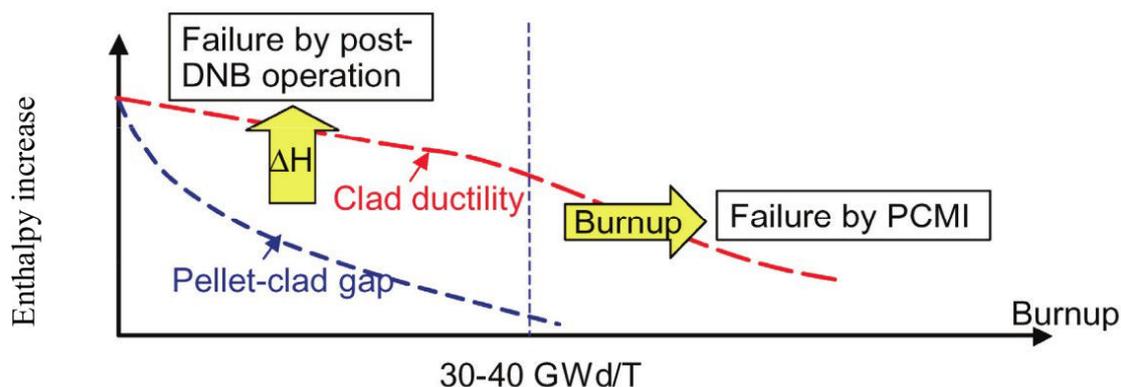


FIGURE 2.7: Effets du taux de combustion sur le mécanisme de rupture (Montgomery et al., 2004)

2.1.2 Critère analytique de tenue de la gaine

En France, dans le cadre de la défense par EDF des dossiers de sûreté des gestions de combustible, l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) demande l'élaboration d'un critère analytique de rupture du matériau de gainage en condition RIA. Ce critère analytique devra reposer sur l'interprétation d'essais de laboratoires permettant de sérier les paramètres mis en jeu (effets de la température, de l'oxydation, de l'irradiation). Cet outil par rapport aux critères empiriques apporte :

- un caractère plus physique : meilleure connaissance des phénomènes matériaux permettant l'anticipation de situations potentiellement dangereuses ;
- une meilleure prédictibilité : diminution des marges très conservatives et donc pénalisantes pour les coûts d'exploitation ;

2.1.2.1 La simulation : élaboration d'un critère analytique inscrit dans le contexte EDF

Dans un souci de cohérence avec les études déjà réalisées pour le traitement des conditions incidentelles de classe 2³, EDF propose l'établissement d'un critère de rupture en Densité d'Énergie de Déformation (DED) présenté équation (2.12) (Pupier et Bernaudat, 2005; Leclercq et al., 2005). Cette approche est déjà appliquée avec succès aux rampes de puissance.

Pour l'instruction du dossier de sûreté RIA, le pôle R&D est en charge de calibrer ce critère pour les différents matériaux de gainage utilisés en centrales REP (Alliages à base zirconium :

3. Les incidents de classe 2 englobent les transitoires de puissance inattendus assez sévères pour induire la rupture en plusieurs fragments des pastilles combustibles.

en jeu dans le crayon sont des phénomènes complexes. Dans ces conditions, la prédiction de la rupture des gaines en alliages de zirconium n'est pas systématiquement en accord avec tous les chargements investigués en laboratoire et implique des marges pénalisantes et incompatibles avec les objectifs de maîtrise des coûts de production à un niveau raisonnable. Ainsi de nombreuses études ont été et sont actuellement menées pour affiner la compréhension et la modélisation des phénomènes influençant la rupture des gaines en conditions accidentelles.

- (Racine, 2005), (Busser, 2009) et (Menibus, 2012) ont étudiés l'effet des hydrures et de leur orientation sur la fragilisation de la gaine ;
- (LeSaux, 2008) et (Doan, 2009) ont étudiés l'effet de l'anisotropie et de l'hydrogène sur le comportement mécanique des alliages de zirconium ainsi que la représentativité des essais mécaniques de laboratoire dans le cadre d'une sollicitation de type RIA ;
- (Perales, 2005) a étudié le développement générique de méthodes de calcul de rupture adaptées à la situation de RIA.

L'apport scientifique de ces études a permis des avancées importantes pour la compréhension de la réponse mécanique de la gaine en conditions RIA. Cependant des améliorations sont encore nécessaires et un des axes de progrès concerne l'effet de l'anisotropie.

2.1.2.2 Anisotropie mécanique de la gaine : une marge de progression

Dans toutes les analyses évoquées jusqu'à présent, l'anisotropie mécanique des alliages de zirconium a été peu étudiée. En effet, la relation entre biaxialité de déformation et biaxialité de contrainte (équation 2.4) est supportée par l'hypothèse forte d'un comportement isotrope. Cependant, le zirconium et ses alliages sont connus pour leur anisotropie de comportement mécanique marquée et certaines études dédiées ou non au RIA ont permis de montrer que cette anisotropie avait une influence notable sur la réponse du matériau à une sollicitation biaxiée.

Influence de l'anisotropie sur la biaxialité du chargement

L'anisotropie mécanique des alliages de zirconium affecte la réponse du matériau non seulement sous un chargement uniaxié (Ballinger et Pelloux, 1981; Lebensohn et Tomé, 1993; Allais et al., 1995; Carre et Zaoui, 1996; Fundenberger et al., 1997; Grange, 1998; Murty et Charit, 2006; Dexet, 2006; Xu et al., 2008; Doan, 2009; Abdolvand et al., 2011) mais également sous un chargement biaxié (Murty et al., 1987; Robinet, 1995; Schäffler, 1997; Geyer, 1999; Tenckhoff, 2005; Murty et Charit, 2006; LeSaux, 2008; Rautenberg et al., 2012). Les résultats d'essais tirés des travaux de (Geyer, 1999) et présentés sur la figure 2.8 permettent d'illustrer ces propos. Geyer a réalisé des essais de pression interne sur tube en Zircaloy-4 recristallisé vierge en imposant différents rapports de biaxialité de contraintes $\sigma_{zz}/\sigma_{\theta\theta}$ (prise en compte ou non d'un effet de fond). Cet auteur montre que la surface de charge obtenue est significativement éloignée d'une surface de charge isotrope (type von Mises). L'importance

de l'anisotropie est d'autant plus marquée que le chargement se rapproche de l'équibiaxialité, chargement typique d'un PCMI. Ainsi, l'anisotropie doit être intégrée afin de rendre compte de l'évolution de la réponse du matériau lors d'un chargement pendant lequel la biaxialité évolue. Dans l'étude de Geyer, qui ne porte pas spécifiquement sur les problématiques liées au RIA, le matériau n'est ni hydruré ni irradié ce qui n'est pas représentatif des conditions de l'accident. L'influence de ces deux paramètres sur l'anisotropie du comportement doit donc être évoquée.

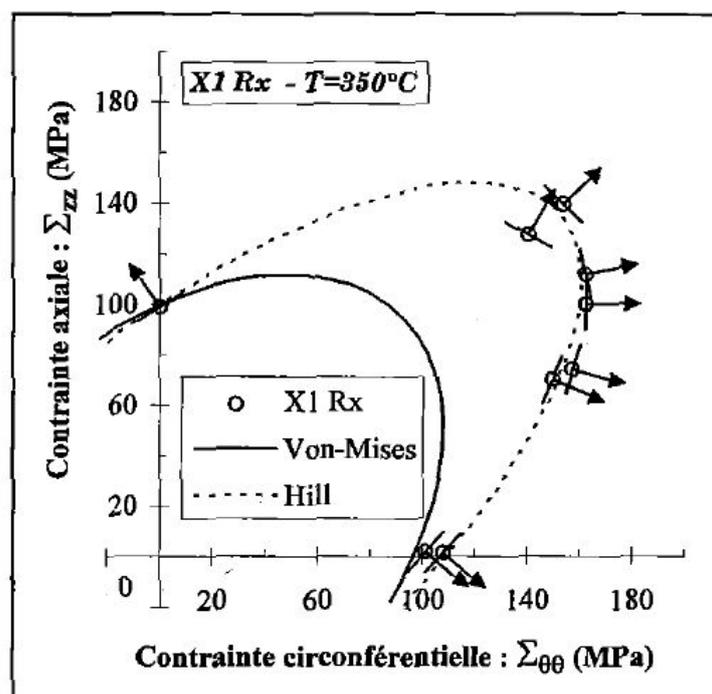


FIGURE 2.8: Surface de charge du Zircaloy-4 recristallisé vierge à 350°C (Geyer, 1999)

Influence des hydrures sur l'anisotropie mécanique

Les hydrures jouent un rôle prépondérant dans l'initiation de la rupture des gaines lors d'un RIA et influent sur leur comportement. En revanche, plusieurs auteurs (Grange, 1998; Evans et Parry, 1996; LeSaux, 2008; Doan, 2009) ont montré que l'anisotropie du comportement mécanique de l'alliage de zirconium n'était pas affectée par l'hydrogène qu'il soit précipité ou en solution solide (figure 2.9). Grange qui a réalisé des essais de traction sur éprouvettes plates pour différentes directions de sollicitation a d'ailleurs pu modéliser l'anisotropie d'entrée en plasticité avec les mêmes paramètres que le matériau soit hydruré ou non.

En conclusion, il nous semble utile d'étudier l'effet d'anisotropie du comportement sur matériau non hydruré.

Influence des défauts d'irradiation sur l'anisotropie mécanique

Une diminution de l'anisotropie avec l'irradiation du matériau a été observée vers 300 °C sur du Zircaloy recristallisé (Nakatsuka et Nagai, 1987), (Mahmood et al., 1989), (Murty et Mahmood, 1991), (Mahmood et al., 1992), (Yagnik et al., 2005). La surface de charge tend alors à se rapprocher d'un comportement isotrope (surface de type von Mises) comme illustré sur la figure 2.10. Ainsi, l'anisotropie mécanique est atténuée par les défauts d'irradiation.

Nous nous limiterons à traiter ici le cas du matériau vierge en considérant qu'un modèle décrivant bien les cas de forte anisotropie décrira également les situations d'anisotropie moins marquées.

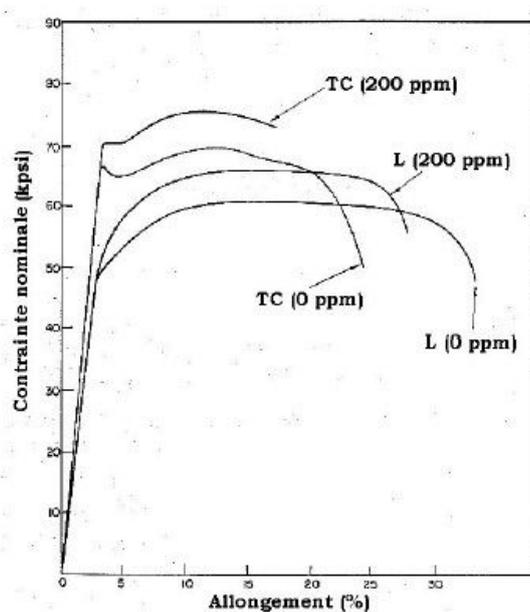


FIGURE 2.9: Influence de la teneur en hydrogène sur l'anisotropie de comportement (Evans et Parry, 1996). TC : traction selon l'épaisseur d'une tôle de texture équivalente aux gaines combustibles ; L : traction selon la direction de laminage d'une tôle.

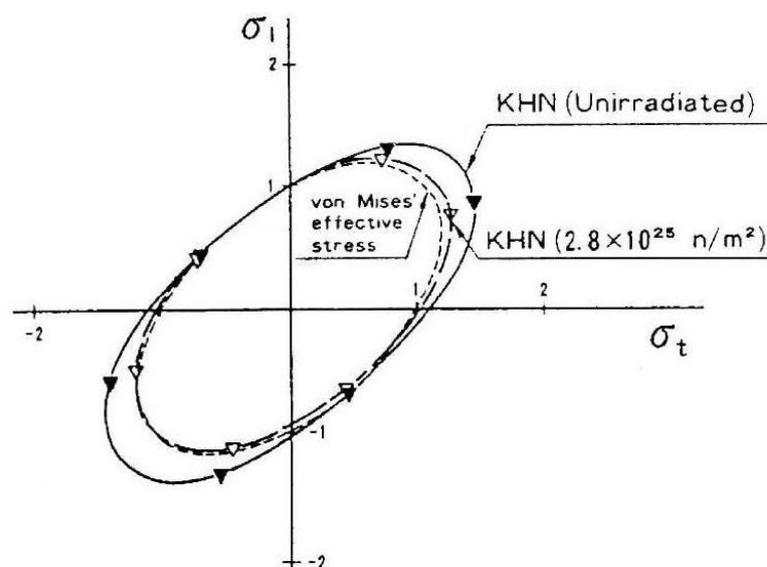


FIGURE 2.10: Surfaces de charge normées déterminées à partir de mesures de dureté Knoop sur des tubes en Zircaloy-2 non irradiés et irradiés (fluence de $2,8 \cdot 10^{25} \text{ n.m}^2$ et température de $300 \text{ }^\circ\text{C}$) (Nakatsuka et Nagai, 1987)

Synthèse

Les résultats des essais intégraux ont permis de caractériser le chargement mécanique subi par la gaine au cours du RIA. En début de transitoire, la gaine qui est encore à basse température est peu ductile et est alors susceptible de rompre. Lors d'un PCMI la gaine est soumise à un chargement thermo-mécanique défini par :

- des températures comprises entre 300 et $600 \text{ }^\circ\text{C}$;
- un déplacement imposé stable ;
- des vitesses de déformation circonférentielles de l'ordre de $0,1$ à 5 s^{-1} ;
- une sollicitation multiaxiée ; la biaxialité des déformations axiales et circonférentielles est comprise entre $0,2$ et $0,7$ tandis que la biaxialité des contraintes axiales et circonférentielles est comprise entre $0,6$ et $0,9$.

Il s'agira donc de la gamme de conditions dans laquelle se positionne l'étude. L'éventail complet ne sera cependant pas abordé dans la présente thèse et les choix quant aux concessions adoptées seront motivés dans les prochains chapitres.

Pour établir à terme un critère de rupture des gaines dédié au RIA, le modèle de comportement du matériau devra intégrer une dépendance réaliste à la biaxialité du chargement. Des essais de laboratoire ont montré que le comportement de la gaine étudié sous de multiples chargements thermo-mécaniques multiaxiés et uniaxiés est dépendant de l'anisotropie mécanique du matériau et ce de façon significative. Les travaux de recherche effectués sur l'établissement de nouvelles lois de comportement, ont permis des améliorations considérables

grâce notamment à la réalisation de campagnes d'essais portant spécifiquement sur la thématique de l'anisotropie (Grange, 1998; LeSaux, 2008; Doan, 2009). Cependant, reproduire le comportement pour toutes les directions de chargement reste un problème difficile et des progrès en ce sens sont nécessaires aussi bien du point de vue méthodologique que du point de vue de la compréhension physique. Par conséquent, cette étude se positionne sur l'approfondissement de la compréhension et de la modélisation de l'anisotropie mécanique du matériau de gainage dans les conditions RIA.

Les gaines immergées en environnement REP, sont supposées irradiées et oxydées avant l'initiation du RIA. Les études de la littérature ont montré que l'hydruration n'a pas d'importance vis à vis de l'anisotropie mécanique du matériau de base alors que l'irradiation peut être un facteur atténuant la dépendance du comportement à la direction de sollicitation. Ne pouvant pas travailler sur matériau irradié (impossible au sein des locaux de EDF et de l'école des Mines), c'est le comportement mécanique anisotrope du matériau de base vierge, non hydruré, non irradié, qui est étudié. L'effet de l'irradiation ne sera donc pas pris en compte et constitue d'ores et déjà une limite de l'étude.

L'anisotropie dépend du matériau de gainage et de son élaboration (détendu, recristallisé ...). Dans la suite, les propriétés métallurgiques du matériau de base et des matériaux de l'étude sont présentées et permettront de comprendre l'origine de leur anisotropie mécanique.

2.2 Le matériau de gainage

2.2.1 Choix du matériau de gainage et composition

Les crayons combustibles sont constitués de gaines en alliages de zirconium faiblement alliés (Sn, O et Nb principalement), dans lesquelles est confiné le combustible nucléaire sous forme de pastilles d'oxyde d'uranium. Les crayons sont immergés dans de l'eau pressurisée à 155 bars qui joue à la fois le rôle de modérateur pour thermaliser les neutrons émis lors des fissions et de fluide caloporteur. Ainsi, les gaines de combustibles présentent des fonctions de première nécessité. Elles doivent à la fois assurer le maintien de la colonne combustible, isoler celui-ci du fluide caloporteur pour le protéger de son action corrosive, évacuer l'énergie, et assurer le rôle de première barrière de confinement vis à vis des produits radioactifs de fission. Ainsi, leur intégrité est une condition primordiale pour les enjeux de sûreté. Cette courte analyse fonctionnelle permet de dresser une liste non exhaustive des principales caractéristiques physiques que doit présenter le matériau de gainage (Mardon, 2008) :

- une faible section efficace de capture et d'activation des neutrons ;
- une bonne tenue à la corrosion, une hydruration faible ;
- de bonnes propriétés mécaniques (ductilité importante, résistance au fluage et à la fatigue) ;

- une compatibilité chimique vis à vis à la fois du réfrigérant et du combustible.

Les propriétés mécaniques et thermo-physiques des matériaux métalliques sont ajustables par addition d'éléments d'alliages. En revanche, il est préférable que les propriétés neutroniques intrinsèques du métal de base répondent aux attentes mentionnées ci-dessus. Le zirconium qui possède l'avantage d'être transparent aux neutrons, est identifié très tôt comme matériau prometteur pour les applications nucléaires. Ses principales propriétés physiques sont reportées dans le tableau 2.1.

Masse Volumique à 20°C (g/cm^3)	6,5
Température de fusion (°C)	1850
Chaleur spécifique à 20°C ($J/Kg/°C$)	276
Conductivité thermique à 20°C ($W/m/°C$)	21,1
Diffusivité thermique à 20°C ($10^2 cm^2/s$)	11,8
Resistivité électrique à 20°C ($\mu\Omega cm$)	44
Module d'élasticité à 20°C (MPa)	98 000
Module de cisaillement à 20°C (MPa)	36 500
Coefficient de Poisson à 20°C (–)	0,35

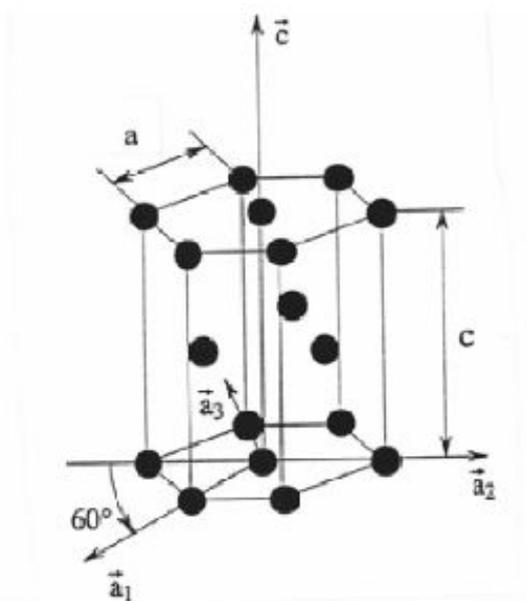
TABLE 2.1: Principales propriétés physiques du zirconium : tableau tiré du manuscrit de (Grange, 1998) construit d'après (Kaufmann et Baroch, 1974)

Avec l'hafnium et le titane, le zirconium appartient à la deuxième série des métaux de transition (Groupe IVa) dans la classification périodique des éléments. Il s'agit d'un métal de structure hexagonale compacte (hexagonal compact pattern (HCP) en anglais) dans sa phase α stable à basse température jusqu'à environ 860°C (cf. figure 2.11a). À 862°C, le zirconium pur présente une transformation de phase allotropique

$$\alpha \rightarrow \beta. \quad (2.13)$$

La phase stable à haute température est la phase β , de structure cubique centrée (body centred cubic (BCC) en anglais) et de paramètre de maille $a = 0,361$ nm à 870°C. À 20°C, les paramètres de maille de la structure HCP de la phase α valent $a = 0,363$ nm et $c = 0,515$ nm. (Bürgers, 1934) a avancé que la transformation inverse $\beta \rightarrow \alpha$ du zirconium serait de type

martensitique. Les relations d'orientation entre les phases β et α , définies par Bûrgers, sont (relations dites de Bûrgers (Bûrgers, 1934)) $(0001)_{HCP} \parallel (110)_{BCC}$ et $[11\bar{2}0]_{HCP} \parallel [\bar{1}11]_{BCC}$.



(a) Maille hexagonale compacte

FIGURE 2.11: (a.) Maille cristalline hexagonale compacte du zirconium

Antérieurement, en 1925, les travaux de Van Arkel et De Boer (Arkel et Boer, 1925) permettent de raffiner le minerai brut en développant notamment une méthode efficace de séparation entre le zirconium et l'hafnium⁸. Puis, en 1944, Kroll (Kroll, 1955) fut le premier à mettre au point une méthode de fabrication industrielle du zirconium. Grâce à ces évolutions, le zirconium, qui était confiné à l'état de curiosité de laboratoire, devient un matériau utilisable par les industriels. Les propriétés du matériau pur ne satisfont cependant pas le cahier des charges des gaines, c'est pourquoi de nombreux ajustements des éléments d'alliages se succèdent pour obtenir un bon compromis entre les différentes compositions (figures 2.12 et 2.13). C'est lors de la construction du premier sous-marin américain à propulsion nucléaire dénommé le Nautilus en 1955, que, pour la première fois, le gainage d'un réacteur nucléaire est réalisé en alliage de zirconium. L'alliage Zircaloy-1 à 2,5% d'étain est retenu. Cependant, des recherches démontrent que la tenue à la corrosion se détériore rapidement avec le temps. Pour remplacer cet alliage, c'est le Zircaloy-2 qui a été découvert par pollution accidentelle d'un lingot de zirconium préparé dans un moule précédemment utilisé pour un acier austénitique. De petites quantités de chrome et de nickel permettent de donner naissance à un alliage de zirconium inoxydable. Le Zircaloy-2 répond alors à tous les critères désirés, c'est

8. L'hafnium qui est un métal de la même famille que le zirconium possède une section efficace d'absorption des neutrons 600 fois plus importante que celle du zirconium.

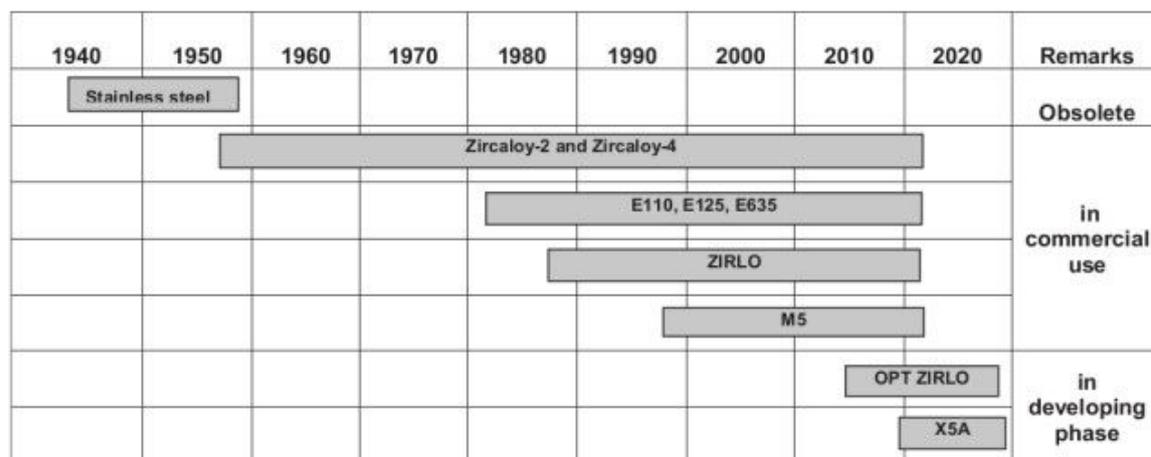


FIGURE 2.12: Histoire du développement des alliages de gaines (Alam et al., 2011)

à dire une faible section efficace, une bonne tenue à la corrosion ainsi que de bonnes propriétés mécaniques d'usage. En 1960, General Electric et Westinghouse remplacent les aciers inoxydables des gaines combustibles par le Zircaloy-2 pour des raisons neutroniques⁹ et de tenue à la corrosion¹⁰. L'utilisation du Zircaloy-2 est pertinente dans les Réacteurs à Eau Bouillante (REB), en revanche dans les REP les conditions de température et de pression plus sévères engendrent la formation d'hydrures qui fragilisent le matériau (diminution de la ductilité). La version améliorée du Zircaloy-2 couramment utilisée dans la filière REP est le Zircaloy-4. Une diminution de la teneur en nickel et une augmentation de la teneur en fer permettent respectivement, une diminution de l'absorption de l'hydrogène (diminution du nombre d'intermétalliques capteurs d'hydrogène) et une meilleure résistance à la corrosion. Néanmoins, les récentes préoccupations concernant l'allongement du temps passé en réacteur des combustibles nucléaires pointent du doigt les limites du Zircaloy-4. La tenue à la corrosion n'est plus suffisamment performante et de nouveaux alliages sont élaborés pour pallier ces limitations. Les recherches aboutissent aux alliages de zirconium au niobium tels que le M5TM, le ZirloTM ou encore l'Optimized ZirloTM. A l'instar de l'étain, le niobium possède un pouvoir mécanique durcissant et renforce la tenue à la corrosion à haute température et à haut taux de combustion.

Comme mentionné préalablement, les caractéristiques attendues pour répondre à l'étude fonctionnelle des gaines combustibles ont été obtenues par addition d'éléments d'alliage. Les principaux effets sur les propriétés mécaniques des éléments d'addition majoritaires pour la famille des Zircaloy sont résumés ci-dessous.

9. Le zirconium possède une section de capture aux neutrons thermiques d'environ 0.20 barn par atome soit 300 fois moins que celle des aciers inoxydables.

10. Les aciers inoxydables se corrodent aisément à haute température.

Composition^a (weight %) of various zirconium alloys.

Alloys	Tin	Iron	Chromium	Nickel	Niobium	Remarks
Zircaloy-1	2.50	–	–	–	–	Not suitable for reactor operation
Zircaloy-2	1.50	0.12	0.10	0.05	–	Although it is used in BWRs but several cases of clad failure have been reported in the literature due to localized corrosion (Shimada et al., 2005)
Zircaloy-3A	0.25	0.25	–	–	–	Lowering tin content improves corrosion resistance but reduces creep resistance and yield strength
Zircaloy-3B	0.50	0.40	–	–	–	
Zircaloy-3C	0.50	0.20	–	0.20	–	
Zircaloy-4	1.50	0.20	0.10	–	–	Recommended for PWR
ZIRLO	1.02	0.10	–	–	1.01	Recommended for PWR for high burn-up fuels
M5 [®]	–	0.05	0.015	–	1.0	Better corrosion resistance than zircaloy-4 at higher temperature
É110	–	–	–	–	0.95–1.05	Recommended for PWR, RBMK and VVER applications
É125	–	–	–	–	2.20–2.60	
É635	1.1–1.3	0.3–0.4	–	–	0.95–1.05	
OPT ZIRLO	0.66	0.11	–	–	1.04	Suitable for higher corrosion condition and have sufficient in reactor creep resistance
X5A (AXIOM)	0.5	0.35	0.25	–	0.3	Better in-PWR properties in comparison to ZIRLO at high burn-up

^a Remainder zirconium.

FIGURE 2.13: Composition en % massique des alliages de zirconium courants pour les gaines combustibles (Alam et al., 2011)

- La solubilité de l'oxygène dans le zirconium est très importante. L'oxygène se place en solution d'insertion dans les sites octaédriques (Pujol, 1994) entravant ainsi le mouvement des dislocations. L'effet durcissant engendré, améliore les caractéristiques mécaniques. À titre d'exemple, (Trecu, 1953) montre que l'ajout d'oxygène permet d'augmenter la limite d'élasticité du zirconium à température ambiante (figure 2.14 (a.)). Cet effet est également mis en avant dans la synthèse de (Robinet, 1995). À haute température l'oxygène se regroupe en amas par diffusion. Le durcissement dépend de la température et est plus important à haute température (franchissement des amas thermiquement activé). Il est maximum autour de 300°C, température pour laquelle un palier athermique est observé (Kaufmann et Baroch, 1974) (Ruano et Elssner, 1987).
- L'étain est en solution solide de substitution. Il permettrait de stabiliser les amas d'oxygène et d'augmenter ainsi les caractéristiques mécaniques de traction telles que la contrainte maximale (R_m) ou la limite d'élasticité ($Rp^{0.2}$) et de diminuer la vitesse de fluage thermique. Ces données sont tirées de la synthèse de (Robinet, 1995) réalisée notamment à partir de l'étude de (Kaufmann et Baroch, 1974). Il dégrade en revanche la tenue à la corrosion généralisée en service.
- Le fer et le chrome qui ont une limite de solubilité faible dans la phase α , stable à basse température (cf. section 1.2.1.3), forment avec le zirconium des phases intermétalliques de structure hexagonale, dites "phases de Laves" de type $Zr(Fe,Cr)_2$ (figures 2.14 (b.)) qui précipitent dans la matrice. Ces précipités sont uniformément répartis au sein des grains et non localisés aux joints de grains ce qui garantit de bonnes propriétés d'usage en particulier une bonne résistance à la corrosion. Ils permettent également de limiter la croissance des grains lors des traitements de recristallisation.
- L'utilisation du carbone sans excès permet de stabiliser les caractéristiques de trac-

tion comme la charge à rupture (R_m).

- L'utilisation du niobium sans excès ($<2,5\%Nb$), permet d'améliorer significativement la tenue à la corrosion et de durcir le matériau.

D'autres effets d'éléments d'alliages sont disponibles dans la synthèse de (Robinet, 1995). Dans le tableau 2.2 sont résumés les effets de certains éléments d'alliage sur les caractéristiques en traction du Zircaloy-4.

2.2.2 Élaboration des produits de gainage

Une fois le matériau brut choisi, il est nécessaire de passer par différentes phases de mise en forme pour obtenir la géométrie attendue. Ainsi, dans la suite, les différentes étapes de transformation en partant du minerai pour arriver jusqu'au produit fini sont présentées succinctement.

Après purification, séparation de l'hafnium et réduction du minerai de zirconium, une masse métallique spongieuse nommée éponge de Zirconium est obtenue. Plusieurs fusions successives de cette éponge sont alors réalisées dans un four à arc afin d'obtenir un lingot homogène. Lors de cette étape les paramètres thermiques sont spécifiques pour chaque alliage (Zircaloy-4, M5, Zirlo ...) et permettent l'ajustement des quantités d'éléments d'alliages requises (i.e étain, fer et chrome pour le Zircaloy-4) par les normes ASTM (cf. tableau 2.3). Les lingots obtenus sont ensuite traités différemment suivant que l'on veuille une tôle (pour certains composants spécifiques de centrale ou pour des études de recherche) ou des tubes (pour les gaines combustibles).

Dans le cadre de nos travaux, c'est le comportement des tôles en Zircaloy-4 recristallisé qui est principalement étudié. Les deux géométries (tôle et tube) sont néanmoins d'intérêt puisque l'un des objectifs de ces travaux réside dans l'étude de la transférabilité de l'anisotropie du modèle mécanique de la tôle vers le tube (cf. Chapitre I : Introduction). Par conséquent la méthode d'élaboration des deux géométries est présentée.

Avant de poursuivre, les notations relatives aux directions principales des repères de la tôle et du tube sont définies sur la figure 2.15.

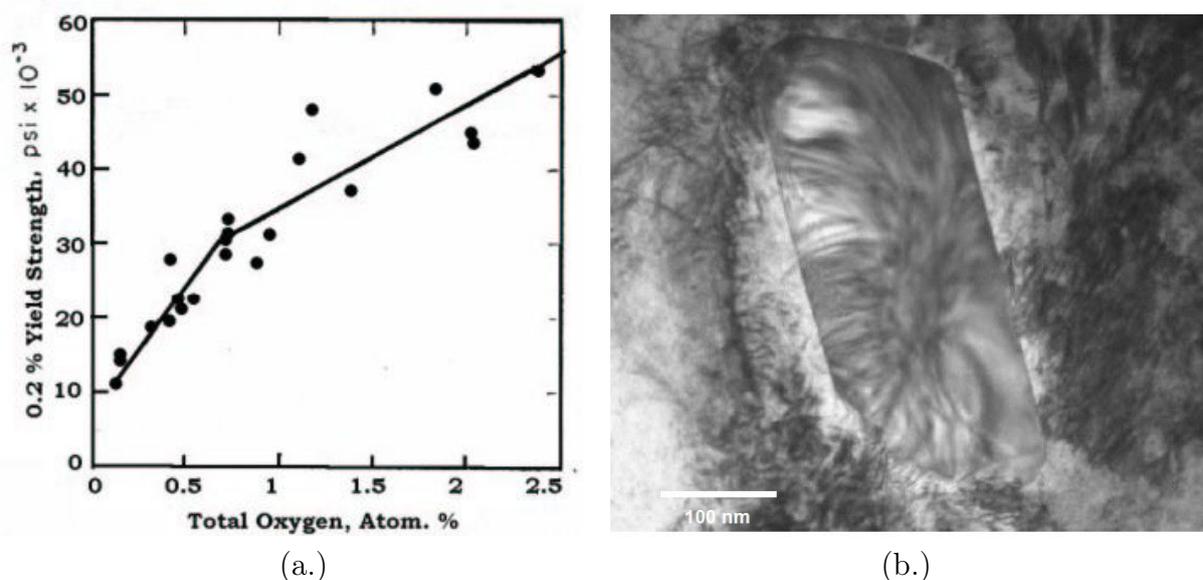


FIGURE 2.14: (a.) Évolution de la limite d'élasticité du zirconium avec la teneur en oxygène (Treco, 1953) (b.) Image MET d'un précipité de phase de Laves $\text{Fe}(\text{Zr},\text{Cr}_2)$ observé dans une gaine en Zircaloy-4 (Ambard et al., 2010)

Éléments	$R_p^{0,2}$	R_m	Allongement réparti
Si	↗	↘	-
P	↘	↘	↗
C	↘	-	↘
Sn	↗	↗	↘
Fe + Cr	↗	↗	↘
Nb	↗	↗	↗
O	↗	↗	↘

TABLE 2.2: Effets des éléments d'alliages sur les propriétés mécaniques conventionnelles en traction du Zircaloy-4 d'après la synthèse de (Robinet, 1995) basée sur l'étude de (Kaufmann et Baroch, 1974)

% massiques	Sn	Fe	Nb	Cr	Ni	O
Zircaloy-2 (ASTM 704)	1,45	0,14	-	0,1	0.05	<0,18
Zircaloy-4 (ASTM 704)	1,45	0,21	-	0,1	-	<0,18
M5	-	0,035	1	-	-	<0,14
Alliage Zr-2,5%Nb (ASTM 705)	-	-	2,5	-	<0,1	<0,18
Zirlo	1	0,1	1	-	-	0,1
Optimized Zirlo	0,67	0,1	1	0,08	-	0,1

TABLE 2.3: Composition chimique moyenne en % massiques de certains alliages de zirconium d'après (Menibus, 2012) ; les compositions d'autres alliages sont également disponibles dans la littérature (Mardon, 2008; Proff, 2011)

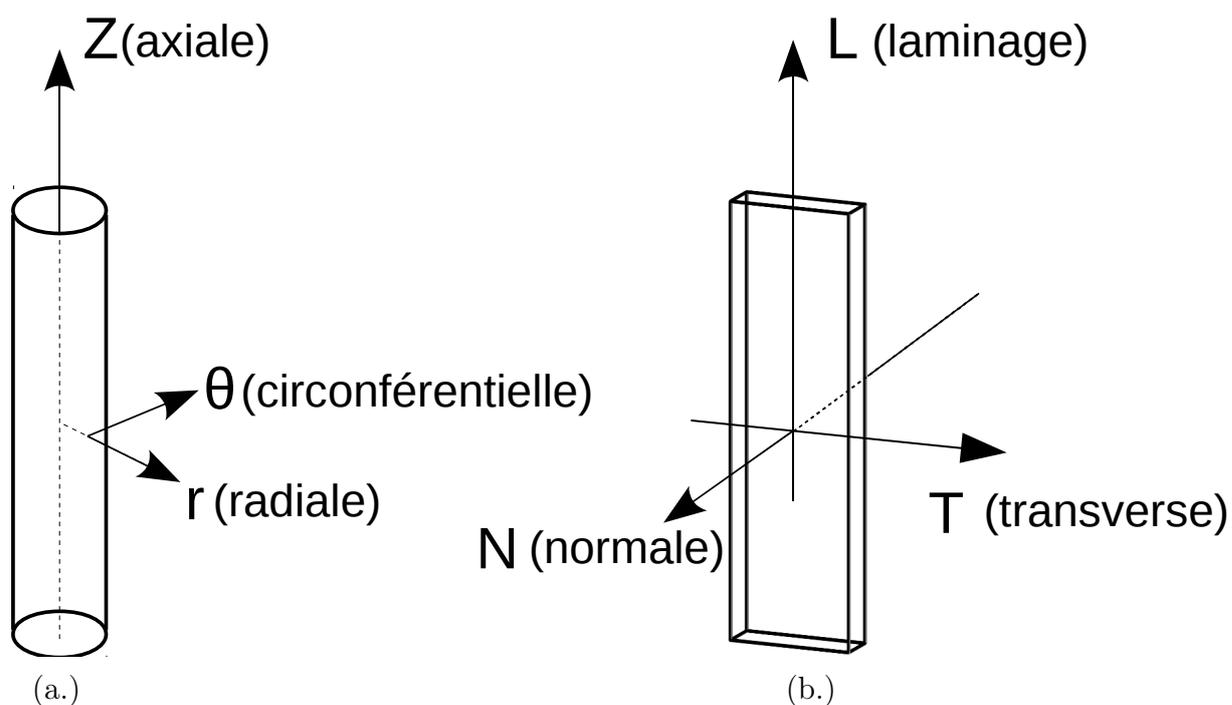


FIGURE 2.15: Notation et désignation des directions pour les géométries considérées : du tube (a.) et de la tôle (b.)

2.2.2.1 Mise en forme des tôles

Pour la fabrication des tôles, les lingots sont traités à chaud dans des laminoirs classiques selon plusieurs passes afin d'atteindre l'épaisseur souhaitée. Le procédé de laminage

induit un élargissement des grains dans la direction transverse (T), une réduction dans la direction normale (N) et enfin un allongement dans la direction de laminage (L). Les tôles sont ensuite traitées thermiquement à 450°C pour relaxer les contraintes internes et obtenir un état de détensionnement. Afin d'obtenir un état recristallisé, les tôles sont traitées à 550°C pendant 4 à 5 heures, ce qui a pour effet d'augmenter la taille des grains et d'annihiler une partie des dislocations résiduelles. Les tôles en Zircaloy-4 recristallisé obtenues suivant cette procédure présentent des grains équiaxes.

2.2.2.2 Mise en forme des gaines

Pour la fabrication des gaines combustibles, le traitement est plus complexe. Le lingot subit plusieurs passes de laminage en phase β et α afin de présenter une forme adaptée pour la réalisation de billettes pleines. La billette est alors extrudée en phase α à 700°C, laminée par procédé dit à "pas de pèlerin" (plusieurs passes (figures 2.16)) et enfin recristallisée. Le produit semi-fini obtenu est le TREX, il s'agit d'un tube avec un diamètre extérieur de 44 mm et une épaisseur de 7,62 mm. Le TREX subit alors plusieurs passes dans un laminoir à pas de pèlerin suivies systématiquement d'un recuit. Un dernier traitement thermique est effectué à 460°C durant 1 heure. Le tube présente alors une épaisseur de 0,57 mm.

Ces produits finis sont ensuite utilisés dans le cœur des centrales nucléaires où ils restent en moyenne trois cycles de 18 mois, après quoi ils sont retirés et retraités.

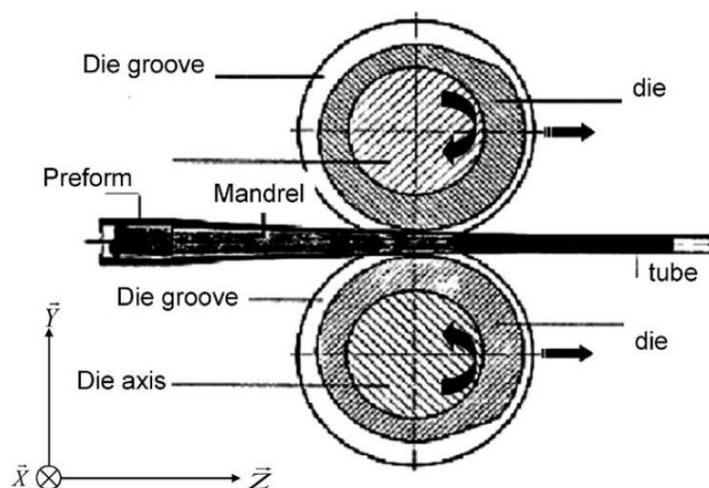


FIGURE 2.16: Principe du laminage à "pas de pèlerin" d'après (Lodej et al., 2006)

2.2.3 Texture, microstructure et mécanismes de déformation

Les alliages de Zirconium présentent des propriétés thermiques, élastiques et plastiques fortement anisotropes à la fois au niveau du monocristal et du polycristal. Cette anisotropie

a deux origines :

- une origine à l'échelle du monocristal : À $T < 825^\circ\text{C}$, le monocristal possède une structure cristalline hexagonale compacte fortement anisotrope ;
- une origine à l'échelle du polycristal : Les tôles et gaines en alliages de Zircaloy sont fortement texturées. Elles présentent une orientation cristallographique préférentielle induisant une anisotropie de comportement.

2.2.3.1 Les mécanismes de déformation

Pour le zirconium et ses alliages, la plasticité cristalline est contrôlée par deux mécanismes de déformation : le glissement sur différents plans cristallins et le maclage. Les métaux de structure HCP se déforment suivant une combinaison entre quatre plans et deux directions. Cinq modes de glissement sont recensés et présentés dans le tableau 2.4 et sur la figure 2.17. Les trois premières familles de glissement référencées ($P < a \rangle$, $B < a \rangle$ et $\pi_1 < a \rangle$) glissent toutes suivant une direction $\langle 11\bar{2}0 \rangle$. Seules les deux dernières familles de glissement ($\pi_1 < c + a \rangle$ et $\pi_2 < c + a \rangle$) ont une composante hors du plan de base. Ces dernières glissent suivant une direction $\langle 2\bar{1}\bar{1}3 \rangle$. De ce fait, les modes de type $\langle c + a \rangle$ sont les seuls à permettre une accommodation de la déformation plastique dans la direction $\langle c \rangle$ parallèle à $\langle 0001 \rangle$. De tous ces modes de glissement on distingue un mode principal facile prépondérant vis à vis des quatre autres modes secondaires plus difficiles à activer. Suivant le métal HCP considéré, le glissement facile est soit le prismatique soit le basal (Legrand, 1984). Dans le cas du zirconium et des alliages associés il s'agit du glissement prismatique (Mills et Craig, 1968; Legrand, 1984; Rapperport, 1959; Akhtar et Teghtsoonian, 1971; Akhtar, 1975; Tenckhoff, 1988; Pujol, 1994; Regnard et Lemaignan, 1995; Geyer, 1999; Ferrer, 2000; Brenner, 2001; Tenckhoff, 2005; Lebon, 2011), ce qui représente seulement 3 systèmes de glissement facile.

Quatre systèmes de maclage sont recensés dans la littérature et sont susceptibles de s'activer : $\{10\bar{1}2\} < \bar{1}011 \rangle$, $\{11\bar{2}1\} < 11\bar{2}6 \rangle$, $\{11\bar{2}2\} < 11\bar{2}3 \rangle$, $\{10\bar{1}1\} < \bar{1}012 \rangle$ (Tenckhoff, 1988) (cf. figure 2.18). Lors d'un essai de traction simple sur un cristal de zirconium à 20°C le maclage prédominant concerne les plans de la famille $\{10\bar{1}2\}$ (Akhtar et Teghtsoonian, 1971) tandis qu'à 527°C les plans de maclage sont de la famille $\{10\bar{1}1\}$ (Akhtar, 1973).

Nom du système de glissement	Notation abrégée	Direction	Plan	Nombre de systèmes
Prismatique	$P \langle a \rangle$	$\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$	$\{1\bar{1}00\}$	3
Basal	$B \langle a \rangle$	$\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$	$\{0001\}$	3
Pyramidal de première espèce	$\pi_1 \langle a \rangle$	$\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$	$\{1\bar{1}01\}$	6
Pyramidal de première espèce	$\pi_1 \langle c+a \rangle$	$\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle$	$\{1\bar{1}01\}$	12
Pyramidal de seconde espèce	$\pi_2 \langle c+a \rangle$	$\vec{b} = 1/3 \langle 11\bar{2}3 \rangle$	$\{11\bar{2}2\}$	6

TABLE 2.4: Principaux systèmes de glissement dans les métaux à structure HCP (Regnard et Lemaignan, 1995; Derep, 1981).

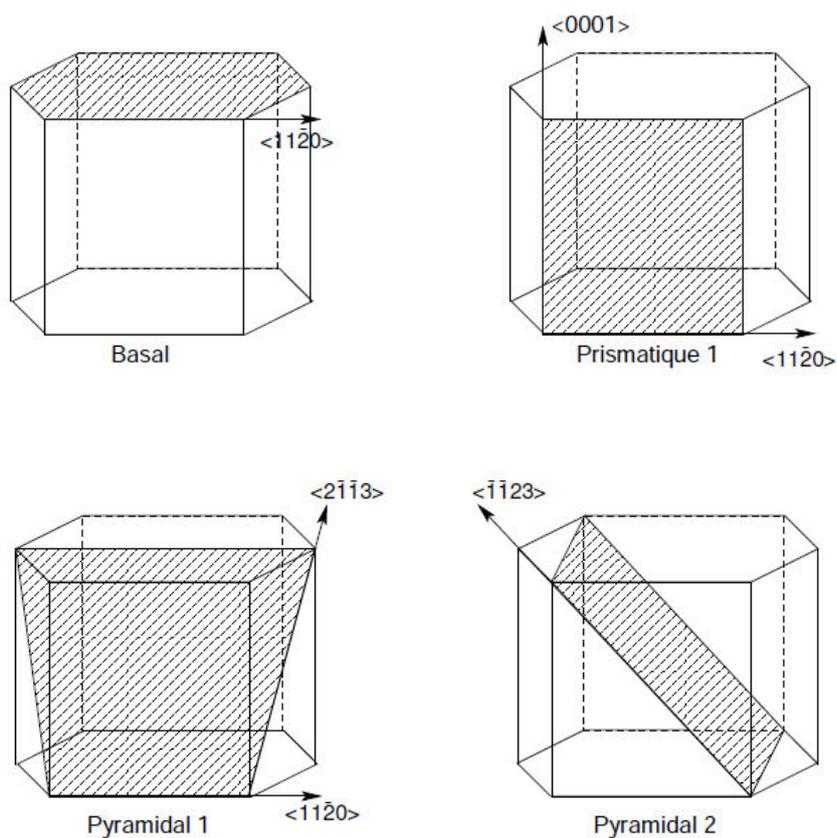


FIGURE 2.17: Systèmes de glissement principaux dans les métaux à structure HCP (Poty, 2012)

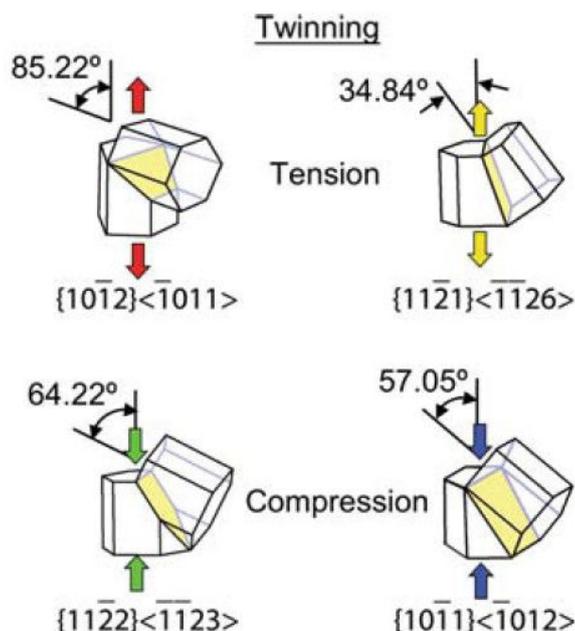


FIGURE 2.18: Représentation de l'angle de rotation subit par l'axe $\langle c \rangle$ de la maille HCP lors du mécanisme de maillage en traction (ligne du haut) en compression (ligne du bas) tirée de l'article (Padilla et al., 2007) et construite d'après (Reed-Hill et al., 1964; Tenckhoff, 1988)

2.2.3.2 Texture cristallographique

Les procédés de laminage utilisés confèrent une forte texture cristallographique aux tôles et aux tubes. Le monocristal de zirconium étant anisotrope de par sa structure cristalline et son faible nombre de systèmes de glissement facile, les industriels tirent partie de cette caractéristique en cherchant à développer une orientation cristallographique préférentielle des grains au sein du polycristal, vis à vis du repère macroscopique, c'est à dire à développer une texture cristallographique. Dans le matériau avant mise en forme, les grains sont orientés aléatoirement. En appliquant une contrainte lors de la mise en forme, les grains se réorientent. Il est ainsi possible d'obtenir des propriétés mécaniques optimisées dans les directions prédéfinies suivant les besoins fonctionnels du composant. Les procédés thermo-mécaniques complexes de mise en forme pour les applications nucléaires sont destinés à orienter les plans de base $\langle 0002 \rangle$ perpendiculairement à la direction radiale des tubes ou à la direction normale des tôles (Tenckhoff, 1988). Lors du laminage (classique ou à pas de pèlerin), la tôle et la gaine sont compressées respectivement dans les directions normale et radiale. Les pôles basals (figure 2.19) tendent alors à s'aligner préférentiellement suivant l'axe de compression, l'axe $\langle c \rangle$ tend à s'orienter parallèlement à la normale à la tôle et à la direction radiale des tubes. En réalité pour les tôles, l'axe $\langle c \rangle$ n'est pas parfaitement parallèle à la normale et présente un angle compris entre 20° et 40° dans la direction L ou T suivant la force exercée. D'autre part, la direction $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ est parallèle à la direction de laminage.

Lors de la recristallisation cette texture peut évoluer :

- une rotation de 30° autour de l'axe $\langle c \rangle$ est généralement observée, c'est alors une direction $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ qui s'aligne avec la direction de laminage ;
- le pôle basal $\langle c \rangle$ a tendance à s'aligner avec la normale (Tenckhoff, 1988). Ainsi, l'angle de 40° entre la normale à la tôle et l'axe $\langle c \rangle$ pour le matériau détendu à tendance à diminuer pour atteindre un angle de 30 à 20° pour le matériau recristallisé.

Cette réorientation n'a pas d'influence sur l'anisotropie mécanique du matériau. En revanche la recristallisation qui induit des évolutions de la distribution des dislocations et de la taille des grains joue de façon importante sur le comportement en fluage (Tenckhoff, 1988).

Pour terminer et d'après la figure 2.19 il existe une équivalence entre la texture des gaines et des tôles (cf. notation des repères sur la figure 2.15) :

- La direction T des tôles dans le repère cartésien est équivalente à la direction circulaire θ de la gaine dans le repère cylindrique
- La direction L des tôles dans le repère cartésien est équivalente à la direction axiale Z de la gaine dans le repère cylindrique
- La direction N des tôles dans le repère cartésien est équivalente à la direction radiale r de la gaine dans le repère cylindrique

C'est l'existence de cette similarité de texture qui laisse supposer que l'anisotropie mécanique sur tôle est proche de l'anisotropie mécanique sur tube dans le repère équivalent défini ci-dessus. La vérification de cette hypothèse est l'un des objectifs de la thèse.

Type of deformation	Element	Strain ellipse in the plane perpendicular to the direction of deformation	Deformation texture	
			$\{0002\}$ pole figure	$\{10\bar{1}0\}$ pole figure
Tube reducing $\frac{R_W}{R_D} > 1$				
Sheet rolling				

FIGURE 2.19: Évolution de la texture suivant le mode de fabrication (Tenckhoff, 1988)

2.3 Les produits de l'étude

Les gaines des centrales françaises sont constituées d'alliages éprouvés tels que le Zircaloy-4 détendu mais également d'alliages de nouvelle génération à base niobium tels que le M5TM par exemple.

2.3.1 Le Zircaloy-4 recristallisé

Bien que les études tendent à s'intéresser au comportement des nouveaux alliages au niobium, les enjeux économiques et de propriétés intellectuelles ne permettent pas toujours de publier les résultats concernant les matériaux actuellement commercialisés. D'autre part l'approvisionnement en M5TM est très limité et peu de tôles ou de gaines dans cet alliage sont disponibles au sein de EDF. Pour ces deux raisons, le M5TM n'a pas pu être utilisé lors de cette étude. Pour contourner cette difficulté, les travaux ont été menés sur le Zircaloy-4 à l'état recristallisé dont le comportement mécanique s'apparente à celui du M5TM.

2.3.2 Les tôles de l'étude

2.3.2.1 Composition

Les tôles de Zircaloy-4 recristallisé de l'étude (Z4RX) ont été approvisionnées par Cézus (AREVA). La composition chimique fournie par l'élaborateur est donnée dans les tableaux 2.5 et 2.6 (moyenne de trois analyses, en pourcentage massique pour les éléments principaux et en particules par millions pour les impuretés). Contrairement aux aciers, les éléments additionnels ne forment que peu d'intermétalliques (oxyde, nitrure) en dehors des phases de laves, c'est pourquoi les alliages de zirconium sont « très » purs. De plus, les éventuels précipités ont une taille et une fraction de phase extrêmement faible qui seront par la suite négligés dans le comportement mécanique.

% massiques	C	Cr	Fe	O	Si	Sn
Z4RX	0,00863	0,11	0,22	0,12	0,0099	1,46

TABLE 2.5: Principaux éléments d'alliages du matériau de l'étude en pourcentage massique tirés des données Cézus

ppm	Al	Hf	N	Ni	Nb	Pb	Ta
Z4RX	17	50	26	16	<40	<20	<50

TABLE 2.6: Principales impuretés en partie par millions tirées des données Cézus

2.3.2.2 Microstructure et texture

Les tôles en Zircaloy-4 recristallisé de l'étude présentent des grains équiaxes (figure 2.20 (a.)) dont la taille moyenne (diamètre) est de $5 \mu\text{m}$ (figure 2.20 (b.)).

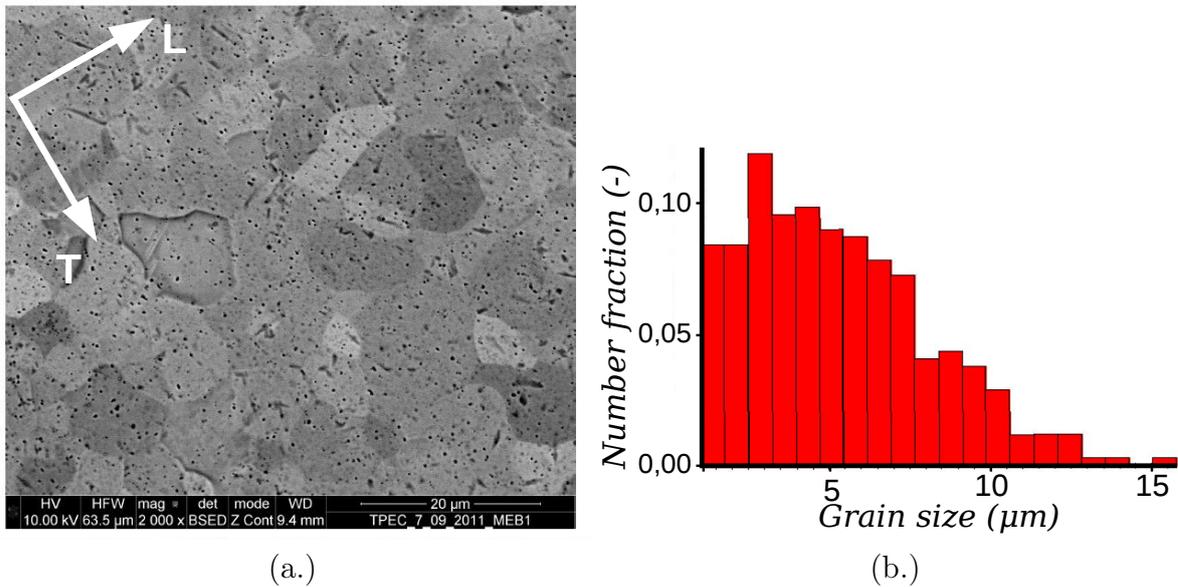


FIGURE 2.20: (a.) Image MEB réalisée avec un détecteur d'électrons retrodiffusés, de la surface (plan LT) d'une tôle de Zircaloy-4 recristallisé polie selon la méthode expérimentale définie en annexe A (b.) Distribution du diamètre des grains obtenue par analyse d'une cartographie EBSD (traitement d'image par le logiciel commercial OIM : les paramètres de l'acquisition sont disponibles en annexe A)

La texture des tôles de Zircaloy-4 recristallisé de l'étude est donnée par les figures de pôle (figure 2.21) des plans basaux et prismatiques. Les pôles $\{10\bar{1}0\}$ sont orientés dans la direction L (RD) tandis que l'axe $\langle c \rangle$ s'écarte d'environ 25° de la normale de la tôle selon la direction T (TD) comme schématisé sur la figure 2.22.

Un autre moyen de quantifier l'anisotropie des métaux hexagonaux est de calculer les facteurs de Kearns f_i (Kearns, 1965) à partir de la mesure de diffraction des rayons X. f_i est défini comme la fraction effective de grains pour lesquels le pôle basal est aligné avec la direction

macroscopique particulière i :

$$f_i = \int_0^{\pi/2} I_\phi \sin\phi \cos^2\phi d\phi \quad (2.14)$$

I_ϕ correspond à l'intensité réfléchiée dans la direction ϕ . $I_\phi \sin\phi$ correspond à la fraction volumique de grains pour lesquels l'axe $\langle c \rangle$ est orienté avec un angle ϕ de la direction i de référence. Dans le cas de la tôle, fN , fL et fT représentent le facteur de Kearns respectivement dans la direction normale, longitudinale et transverse de la tôle. Ainsi $fN + fL + fT = 1$. Les coefficients de Kearns reportés dans le tableau 2.7 sont tirés des travaux de (Doan, 2009) qui a travaillé sur des tôles de composition et de texture extrêmement proches de celles de la présente étude. fN est bien plus important que fL et fT ce qui prouve que l'axe $\langle c \rangle$ est préférentiellement orienté suivant la normale à la tôle.

	fN	fL	fT
Z4RX	0,63	0,09	0,28

TABLE 2.7: Facteurs de Kearns du Z4RX (Doan, 2009) mesurés à partir des figures de pôles réalisées par la technique de diffraction des rayons X

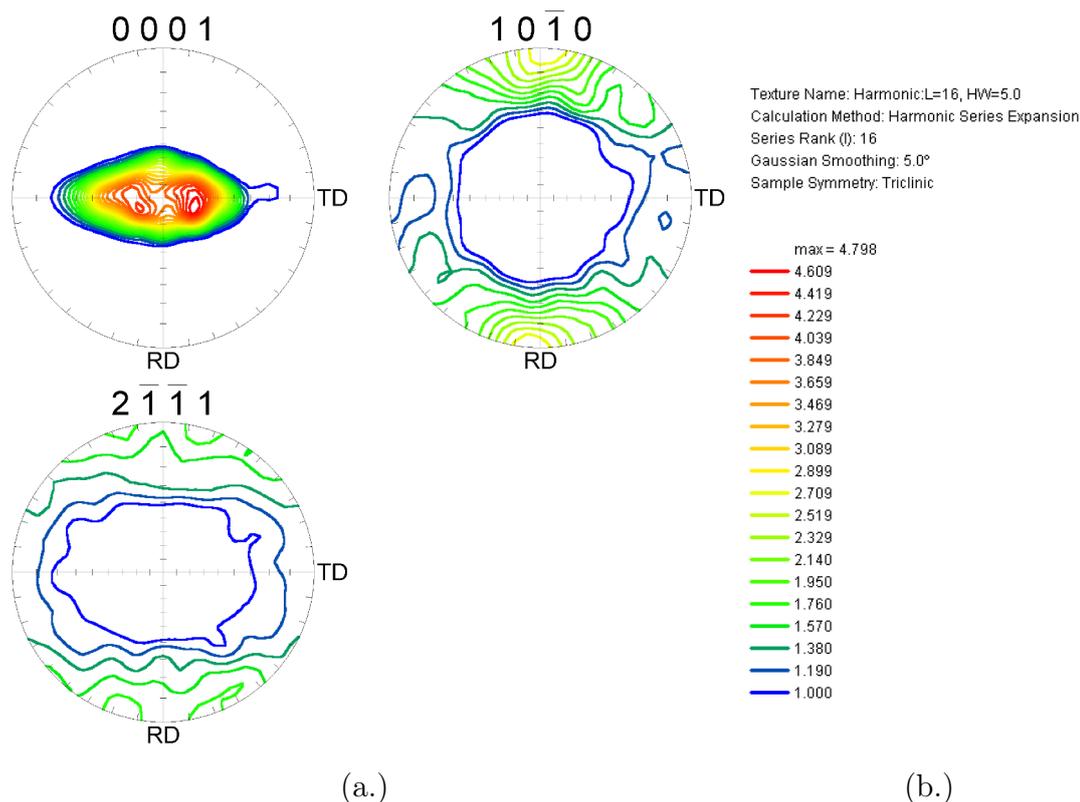


FIGURE 2.21: (a.) Figures de pôles obtenues par analyse d'une cartographie EBSD réalisée sur une zone de $650 \times 650 \mu\text{m}^2$ (traitement d'image par le logiciel commercial OIM, cf. annexe A) (b.) Légende

2.3.2.3 Propriétés mécaniques de référence

Les principales propriétés mécaniques en traction à 20°C des tôles de l'étude sont reportées dans le tableau 2.8. Il s'agit des résultats d'essais à vitesse de déformation imposée de 1 s^{-1} . La texture de la tôle combinée à la pauvreté du nombre de systèmes de glissement facile dans les matériaux de structure HCP a pour conséquence une anisotropie plastique observable à l'échelle macroscopique. Pour illustration, toutes les grandeurs du tableau sont différentes pour les deux directions caractéristiques de la tôle (L et T). Cette thématique dans le cadre d'une sollicitation uniaxiale sera abordée en détail dans le chapitre 3.

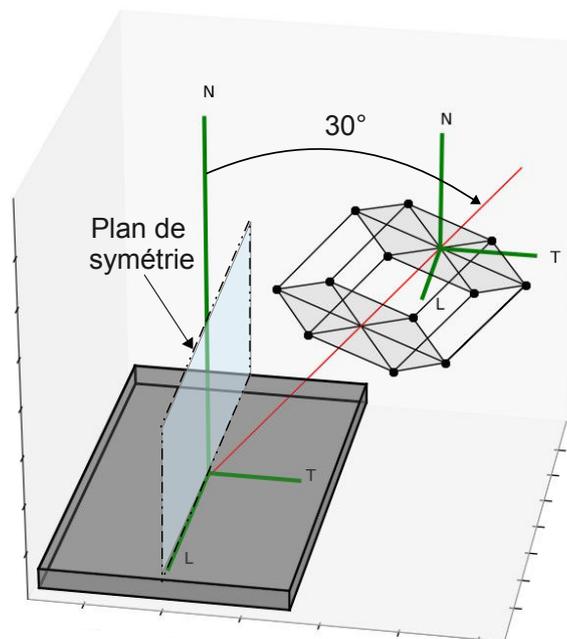


FIGURE 2.22: Schéma présentant la texture du matériau de l'étude

Direction	L	T
Limite d'élasticité à 0,2 % $Rp^{0,2}$ (MPa)	350	378
Contrainte d'écoulement à 10 % de déformation plastique Rp^{10} (MPa)	506	483
Contrainte maximale Rm (MPa)	603	564
Allongement réparti Ar (%)	18,1	11,7

TABLE 2.8: Propriétés mécaniques de référence des tôles de l'étude. Mesures pour des essais de traction uniaxiée réalisés à 1 s^{-1} et température ambiante

2.4 Conclusions

Les alliages de zirconium pour les applications nucléaires sont mis en forme par laminage ce qui leur confère une forte texture cristallographique. Cette texture associée au faible nombre de systèmes de glissement facile est à l'origine d'une anisotropie de comportement mécanique observable à l'échelle macroscopique pour divers types de sollicitations. Lors d'un scénario hypothétique de RIA, le crayon combustible est sollicité en chargement multiaxié compris entre une traction équibiaxiée et une traction en déformation plane. Les lois de comportement de la gaine dédiées au RIA doivent prendre en compte cette anisotropie qui influe

significativement sur sa réponse mécanique et suffisent pour simuler les essais intégraux. Néanmoins, des difficultés demeurent quand à la reproduction de tous les chargements explorés en laboratoire. Des améliorations de la compréhension de cette anisotropie et de sa modélisation sont attendues.

Le parti pris de ces travaux réside dans l'étude de l'anisotropie du comportement des tôles en alliages de Zircaloy-4 recristallisé. On se propose d'évaluer et de modéliser l'anisotropie sur tôle afin de vérifier que celle-ci est comparable à l'anisotropie sur gaine. Le but étant de simplifier la démarche expérimentale pour étudier et modéliser de manière isolée et plus complète l'effet de l'anisotropie sur le comportement de tubes en conditions RIA.