



**HAL**  
open science

## Mechanical behaviour and damages within the oxide layer on Zy4 cladding during a RIA

Vincent Busser, Marie-Christine Baietto, Jean Desquines, Christian Duriez,  
Jean-Paul Mardon

► **To cite this version:**

Vincent Busser, Marie-Christine Baietto, Jean Desquines, Christian Duriez, Jean-Paul Mardon. Mechanical behaviour and damages within the oxide layer on Zy4 cladding during a RIA. *Matériaux & Techniques*, 2011, 99 (1), pp.127-130. 10.1051/mattech/2010116 . hal-00938374

**HAL Id: hal-00938374**

**<https://hal.science/hal-00938374>**

Submitted on 29 May 2019

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Copyright

# Mécanismes d'endommagement de la couche d'oxyde des gaines de crayons de combustible en situation accidentelle de type RIA

V. Busser<sup>1</sup>, M.-C. Baietto<sup>2</sup>, J. Desquines<sup>1</sup>, C. Duriez<sup>1</sup> et J.-P. Mardon<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), Direction de Prévention des Accidents Majeurs, Centre d'Études de Cadarache, BP 3, 13115 Saint-Paul lez Durance Cedex, France  
e-mail : [vincent.busser@irsn.fr](mailto:vincent.busser@irsn.fr)

<sup>2</sup> Université de Lyon, CNRS, INSA-Lyon, LaMCoS UMR5259, 69621 Villeurbanne Cedex, France  
e-mail : [marie-christine.baietto@insa-lyon.fr](mailto:marie-christine.baietto@insa-lyon.fr)

<sup>3</sup> AREVA-NP SAS, 10 rue Juliette Récamier, 69456 Lyon Cedex 06, France

## Mots-clés :

Zircaloy-4 ; oxydation ; fissures ; compression d'anneau ; endommagement ; éléments-finis ; desquamation

**Résumé** – En cas d'accident de réactivité, le comportement thermomécanique des gaines de crayons de combustible est fortement influencé par la présence de la couche d'oxyde formée sur les gaines en alliage de zirconium durant son irradiation en réacteur. L'objectif de cette thèse est d'étudier les mécanismes susceptibles de conduire à la desquamation de la couche d'oxyde sous l'effet de sollicitations mécaniques. Des tronçons de gaines en Zircaloy-4 ont été oxydés en air à 470 °C. Des observations métallographiques des échantillons ont révélé la présence de nombreuses fissures au sein de la zircone. Un code couplant mécanique et croissance de la couche d'oxyde a été développé. Il permet la prédiction des profils de contraintes dans l'oxyde et la profondeur des fissures radiales initiées dans l'oxyde. Le modèle a été validé sur des essais. La fissuration-desquamation de la couche d'oxyde a été étudiée à partir d'examen métallographiques d'anneaux ayant subi un essai de compression d'anneau. L'analyse des données expérimentales a révélé une succession de plusieurs mécanismes : initiation de fissures radiales dans la couche d'oxyde, puis propagation radiale de ces fissures jusqu'à l'interface métal-oxyde et, enfin, bifurcation et propagation de la fissure le long de l'interface conduisant à la desquamation de fragments.

## Key words:

Zircaloy-4; oxidation; cracks; ring compression test; damage; finite element; spallation

**Abstract – Mechanical behaviour and damages within the oxide layer on Zr4 cladding during a RIA.** During reactivity initiated accident, the importance of cladding tube oxidation on its thermomechanical behavior has been investigated. After RIA tests in experimental reactors, oxide damage including radial cracking and spallation of the outer oxide layer has been evidenced. This work aims at better understanding the key mechanisms controlling these phenomena. Laboratory air-oxidation of Zircaloy-4 cladding tubes has been performed at 470 °C. SEM micrographs show that radial cracks are initiated from the outer surface of the oxide layer and propagated radially towards the oxide-metal interface. A model predicting the stress evolution within the oxide and the depth of radial cracks has been developed and validated on literature tests and tests of this study. Ring compression tests were used for the experimental study of the oxide degradation under mechanical loading. Experimental data revealed three mechanisms: densification of the radial crack network, propagation of these radial cracks, branching and spallation of oxide fragments.

L'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) réalise des recherches et des expertises scientifiques dans les domaines de la sûreté nucléaire et de la radioprotection. Dans le cadre de la sûreté des installations, le service d'étude et de modélisation du combustible en situation accidentelle (SEMCA) de l'IRSN effectue des recherches sur la modélisation du comportement thermomécanique du combustible des réacteurs nucléaires en dehors des conditions nominales de fonctionnement. Ce travail s'intègre au contexte des accidents de réactivité RIA (*reactivity initiated accident*). L'accident de réactivité (RIA) est un accident de dimensionnement des réacteurs à eau sous pression (REP) pour lequel on postule l'éjection brutale d'une barre de commande permettant le pilotage de la réaction sous l'effet de la pression du système. Les conséquences de cet accident sur le combustible sont une augmentation rapide (de l'ordre de quelques millisecondes à une seconde) de la réactivité du cœur. Le dépôt d'énergie associé induit une élévation significative de la température du

combustible. Lors d'un accident de type RIA, les gaines de combustible sont susceptibles de se rompre sous l'effet de la dilatation thermique du combustible. On s'intéresse ici, plus particulièrement, à la résistance mécanique des gaines ayant subi un endommagement du fait de leur utilisation prolongée en réacteur. Ce travail, cofinancé par AREVA-NP, s'inscrit dans le cadre de programmes de recherche visant à la compréhension et la simulation du comportement de crayons combustibles lors de transitoires accidentels de type RIA dans les REP.

Lors du fonctionnement nominal, la gaine est oxydée progressivement par le caloporteur. De ce fait, les crayons de combustible à fort taux de combustion présentent une couche d'oxyde pouvant atteindre des épaisseurs de 100  $\mu\text{m}$ . Lors d'essais simulant un RIA dans le réacteur expérimental CABRI, il a été observé une desquamation dite transitoire de cette couche d'oxyde [1]. Les examens visuels montrent que l'oxyde s'écaille par plaques plus ou moins étendues. En outre, des simulations numériques de ces essais RIA montrent que la présence ou l'absence de cette couche d'oxyde influence notablement la température lors du transitoire accidentel en périphérie externe de gaine [2]. Ainsi, selon que l'oxyde ait subi ou non une desquamation transitoire, le matériau de gainage est susceptible d'avoir un comportement fragile ou ductile. Cet effet important a motivé la réalisation d'une thèse afin de caractériser l'enchaînement des mécanismes à l'origine de la desquamation transitoire. Un programme expérimental sur matériau représentatif et des travaux de modélisation ont été conduits de front.

Les matériaux étudiés sont des tronçons de tubes de gainage en alliage de Zirconium : Zircaloy-4 bas étain, fourni par Areva-NP, dans deux états métallurgiques différents : recristallisé (RXA) et détendu (SRA). La composition chimique de chacun des alliages est donnée dans le tableau 1. Le diamètre extérieur et l'épaisseur des gaines sont respectivement 9,5 mm et 570  $\mu\text{m}$ .

**Tableau 1. Composition chimique des matériaux étudiés [% massique].**

*Table 1. Chemical composition of studied material (weight %).*

	Sn	Fe	Cr	O
Zircaloy-4 RXA	1,29	0,21	0,10	0,128
Zircaloy-4 SRA	1,32	0,21	0,11	0,141

## 1 Oxydation et modélisation de la fissuration radiale de la couche d'oxyde

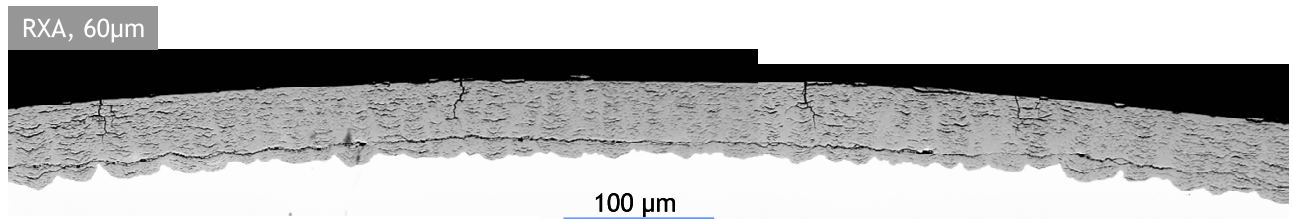
Afin d'étudier l'endommagement de la couche d'oxyde lorsqu'elle est soumise à des sollicitations mécaniques, une phase d'oxydation en laboratoire est nécessaire au préalable. Compte tenu des cinétiques d'oxydation, il n'a pas été possible de réaliser des oxydations à 350 °C simulant fidèlement les conditions de fonctionnement en réacteur. En effet, les durées d'oxydation associée sont incompatibles avec celles d'une thèse. De ce fait, les oxydations ont été menées à 470 °C en air sur des anneaux. Des épaisseurs d'oxyde de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$  ont été obtenues en 6 mois environ.

Les déformations circonférentielles des tronçons oxydés d'anneau ont été évaluées. Elles mettent en évidence un fort couplage entre les processus d'oxydation et le comportement mécanique de la gaine oxydée. Les observations au MEB de ces tronçons confirment également ce couplage. Les couches d'oxyde présentent une morphologie similaire à celles décrites dans la littérature : ondulation de l'interface, présence de porosités ou fissures circonférentielles, présence de fissures radiales dans l'oxyde [3–5]. Chacun de ces mécanismes est corrélé à une contribution forte de la mécanique :

- l'ondulation de l'interface est reliée aux importantes contraintes de compression à l'interface ;
- le micro-flambement de la couche d'oxyde et donc la création des porosités circonférentielles sont associés aux niveaux de contraintes ;
- l'initiation de fissures radiales est causée par les contraintes de traction en peau externe de l'oxyde dès que la contrainte à rupture de la zircone est atteinte.

Une modélisation mécanique de l'oxydation (MECOX2D) a été proposée afin d'évaluer les niveaux de contraintes et/ou de déformations dans l'oxyde et dans la gaine à l'issue d'une oxydation [6]. L'apport principal de la modélisation réside dans la formulation du terme des déformations induites par l'oxydation, qui est la somme de trois contributions :

- la contribution géométrique, la seule évoquée jusqu'à présent dans la littérature ;



**Fig. 1. Observation au MEB de la couche d'oxyde formée sur un tronçon de gaine en Zircaloy-4 recristallisé oxydé pendant 88 jours à 470 °C en air.**

*Fig. 1. SEM micrograph on cross section in backscattered electron mode of RXA Zircaloy-4 samples oxidized in air at 470 °C during 88 days.*

- les contributions indirectes de la plasticité et surtout du fluage du métal, qui nous permettent d'expliquer quantitativement bon nombre d'observations expérimentales.

Des essais de déflexion [7] ont été utilisés pour évaluer le terme de déformation géométrique par une méthode analytique. MECOX2D repose sur la résolution des équations de compatibilité des déformations et d'équilibre mécanique. Les résultats obtenus ont été validés par comparaison avec des essais de la littérature et avec des mesures de déformations des tronçons oxydés. Le modèle MECOX2D confirme la présence de fortes contraintes de compression à l'interface ainsi que la présence d'un fort gradient de contraintes dans la couche d'oxyde. Une prédiction précise de la profondeur des fissures radiales, facteur principal de non-représentativité de la morphologie de la couche d'oxyde formée dans les conditions expérimentales de la thèse, est possible au moyen de cette modélisation. Ces fissures s'initient en raison d'un fort gradient de contraintes dans l'épaisseur de la zircone conduisant à des contraintes de traction en peau externe de l'oxyde. Ce gradient est totalement conditionné par le fluage de la gaine.

Pour des conditions de température et de pression représentatives du fonctionnement en réacteur, une cinétique d'oxydation plus lente ainsi qu'un fluage de gaine notablement plus lent sont attendus. La compétition entre ces phénomènes conduit à l'apparition de fissures radiales à une épaisseur d'oxyde bien plus importante que lors d'une oxydation en air à 470 °C. MECOX2D constitue donc un outil particulièrement utile permettant à la fois d'analyser la couche d'oxyde créée en laboratoire mais également de la comparer à celle obtenue en irradiation de base.

## 2 Fissuration et desquamation de la couche d'oxyde sous sollicitation mécanique

Des essais de compression d'anneaux (RCT) ont été réalisés pour appliquer un chargement mécanique à la gaine et à la couche d'oxyde. Ces essais permettent d'obtenir un fort gradient de déformation tangentielle le long de la peau externe de l'échantillon cylindrique. Il est ainsi possible d'étudier l'effet des déformations jusqu'à des niveaux particulièrement importants (40 %) [8]. Les mécanismes d'endommagement dépendant du niveau de déformations mécaniques appliquées, peuvent ainsi être caractérisés par des essais RCT en s'appuyant sur un nombre limité d'échantillons. Le choix d'un tel essai est pertinent dans la mesure où un essai de pressurisation interne ou de fluage induirait des déformations homogènes le long de la circonférence de l'anneau et nécessiterait un nombre conséquent d'essais pour couvrir une gamme aussi étendue de déformations.

Une méthodologie de dépouillement des observations métallographiques post-essais des échantillons après essai RCT a été développée puis validée. Des relevés de taille de fragments, de taille de ligaments et de fractions de desquamation ont ainsi été effectués et corrélés aux déformations mécaniques locales, calculées par éléments-finis. Trois mécanismes d'endommagement ont été identifiés grâce à l'analyse des données expérimentales :

- la subdivision de fragments sous sollicitation mécanique. Un critère en déformation de fissuration radiale des fragments a été proposé ;
- la propagation radiale des fissures sous sollicitation mécanique. Une déformation de 2% entraîne la propagation quasi-complète des fissures radiales jusqu'à l'interface métal-oxyde ;

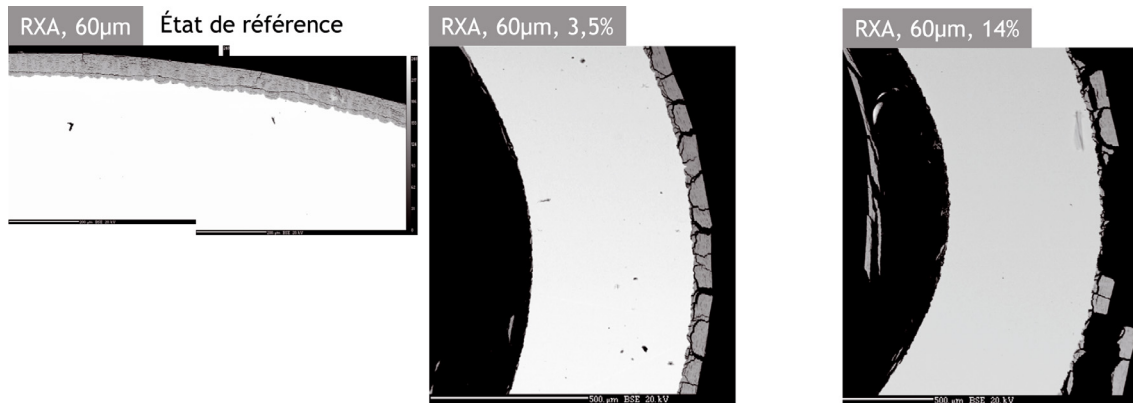


Fig. 2. Métallographies post-essais d'un anneau oxydé (60  $\mu\text{m}$ ) après oxydation (état de référence), et après essai RCT pour deux niveaux de déformations circonférentielles maximales (3,5 % et 14 %).

Fig. 2. SEM micrographs, on cross-section in the ring mid-section, in backscattered electron mode after oxidation exposure (reference) and after RCT at different strain levels (3.5% and 14%).

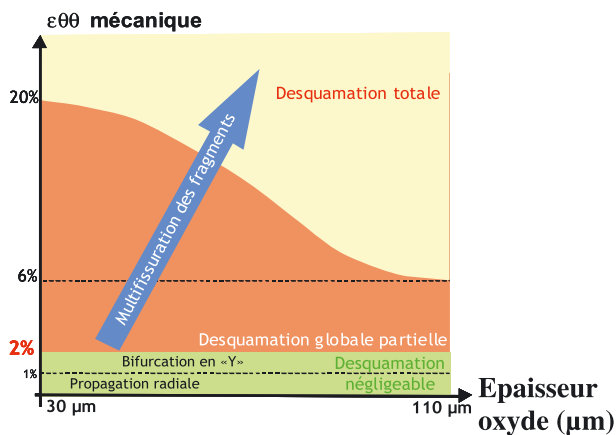


Fig. 3. Synthèse de l'endommagement de la zircone formée en air à 470 °C sous sollicitation mécanique.

Fig. 3. Proposed damage mechanisms of the oxide layer formed in air at 470 °C submitted to mechanical loading.

- un critère de desquamation a pu être mis en évidence : à partir d'une déformation mécanique de 2 %, la desquamation se produit.

### 3 Approche de modélisation de la fissuration de la couche d'oxyde sous sollicitation mécanique

Une pré-étude de la fissuration de la couche d'oxyde a été réalisée en utilisant la méthode des éléments-finis et en assimilant la zircone à un solide dense avec un réseau de fissures circonférentielles. La forte influence de la porosité linéique a été mise en évidence et montre que l'hypothèse de solide dense pour la zircone est inadaptée. Les modèles analytiques de films minces fragiles et denses sur substrat ductile sont donc inexploitable.

### 4 Conclusions et perspectives

La fissuration-desquamation de la couche d'oxyde a été étudiée sur la base d'observations métallographiques d'anneaux soumis à un essai RCT. Trois principaux mécanismes ont été mis en évidence. Ils ont pu être caractérisés par des critères mécaniques pour le matériau de l'étude. D'autre part, des études de modélisation ont récemment été réalisées et démontrent une influence importante des fissures circonférentielles sur les valeurs de ces critères. Une réflexion devra être engagée pour la transposition de ces critères à un matériau plus représentatif de l'oxyde formé dans les conditions réacteur.

Compte tenu de l'impact de la desquamation de la zircone sur la tenue mécanique des crayons de combustible à fort taux de combustion soumis à un accident de type RIA, le travail apporte des éléments intéressants en vue de l'établissement de critères de sûreté.

### Références

- [1] J. Papin et al., *Nucl. Technol.* 157 (2007) 230
- [2] V. Georghentum et al., *J. Nucl. Sci. Technol.* 43 (2006) 1089
- [3] P. Bossis et al., *Zirconium in Nuclear Industry, ASTM STP 1354* (2000) 918
- [4] P. Bossis et al., *Zirconium in Nuclear Industry, ASTM STP 1423* (2002) 190
- [5] P. Bossis et al., *Zirconium in Nuclear Industry, ASTM STP 1467* (2006) 494
- [6] V. Busser et al., *Mater. Sci. Forum J.* 595-598 (2008) 419
- [7] F. Antoni-Le Guyadec, thèse INPG, 1990
- [8] V. Busser et al., *J. Nucl. Mater.* 384 (2009) 87