#### FROM RESEARCH TO INDUSTRY

# Cea den







SIMULATION PAR IRRADIATION AUX IONS DES DÉGÂTS D'IRRADIATION DANS LE COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE USÉ EN SITUATION DE STOCKAGE GÉOLOGIQUE : APPORT DES ÉTUDES PAR DRX

<u>H. Palancher<sup>1</sup></u>, E. Castelier<sup>1</sup>, M. Ibrahim<sup>1,2</sup>, A. Boulle<sup>3</sup>, A. Richard<sup>1,4</sup>, Ph. Goudeau<sup>4</sup>, M. Bornert<sup>2</sup>, S. Caré<sup>2</sup>, R. Belin<sup>1</sup>, F. Rieutord<sup>5</sup>, J-S. Micha<sup>5</sup>, N. Blanc<sup>6</sup>, N. Boudet<sup>6</sup>, A. Ambard<sup>7</sup>



# Ceaden cycle du combustible nucléaire



# CeadenStockage à long terme en couchesGÉOLOGIQUES PROFONDES : PROBLÉMATIQUE HE

Production significatives d'He dans du combustible usé par décroissance α des radionucléides produits durant l'irradiation en pile



Température : <250 ℃



CEA intenal report (2004) DPC/SECR 04-032

| PAGE 3

#### **DEUX TYPES DE MATÉRIAUX POUR SIMULER LE** Ceaden **COMPORTEMENT DU COMBUSTIBLE USÉ**

120

Dopage par émetteurs  $\alpha$  (<sup>238</sup>Pu,...) de pastilles UO<sub>2</sub> et étude du vieillissement



- échantillons très irradiants
- durée d'attente avant disponibilité échantillons

Stabilité mécanique <sup>238</sup>PuO<sub>2</sub> après vieillissement ?





Auto-irradiation de l'ordre de 100 dpa : non représentative du C.U. en situation de stockage (UOX <5 dpa, MOX ≈ 20 dpa).



D. Roudil et al.. personal communication (2005)

Grenoble | 03 Décembre

PAGE 4



$$^{236}_{94} Pu \xrightarrow[87]{87 years} \xrightarrow{234}_{92} U(0.1 \text{ MeV}) + {}^{4}_{2} He(5.5 \text{ MeV})$$

### DEUX TYPES DE MATÉRIAUX POUR SIMULER LE COMPORTEMENT DU COMBUSTIBLE USÉ

**Dopage par émetteurs \alpha (<sup>238</sup>Pu,...) de pastilles UO<sub>2</sub> et étude du vieillissement** 



Ph. Garcia et al., *J. Nucl. Mater.* 430 (2012) 156–165

# Ceaden matériau initial : Polycristaux d'uo2



# Ceaden

### **MESURE DES GRADIENTS DE DÉPLACEMENT À** L'ÉCHELLE DU MICROMÈTRE

Implantation de 6 disques UO<sub>2</sub> avec He<sup>+</sup> 60 keV

Fluences : 0.1, 0.5, 1, 5, 10, 20×10<sup>15</sup> ions/cm<sup>2</sup>



Volume sondé par les R.X. est très supérieur à

l'épaisseur de la couche implantée

- Mesure des déformations dans la couche implantée :
  - μ-DRX: échelle microscopique (taille faisceau de R.X. très inférieure à celle des grains),
    - 1×2 µm (BM32@ESRF)
  - DRX: échelle macroscopique (disque).



### MESURE DES GRADIENTS DE DÉPLACEMENT À L'ÉCHELLE DU MICROMÈTRE

Implantation de 6 disques UO<sub>2</sub> avec He<sup>+</sup> 60 keV

Fluences : 0.1, 0.5, 1, 5, 10, 20×10<sup>15</sup> ions/cm<sup>2</sup>



- Mesure des déformations dans la couche implantée :
   UDEX: échelle microsconique (teille foissonu de D.X. très inférie
  - μ-DRX: échelle microscopique (taille faisceau de R.X. très inférieure à celle des grains), 1×2 μm (BM32@ESRF)





Influence orientation de grains



Ceaden

1×10<sup>16</sup> <sup>4</sup>He<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>

# Ceaden modele mécanique : cas élastique

#### Hypothèses du modèle :

- L'implantation en ions He induit in gonflement isotrope,
- Réaction de la part de la zone non implantée, infiniment épaisse de l'échantillon (substrat)
- Pas d'interaction entre grains voisins : un polycristal est une somme de monocristaux

#### **Approximations :**

- Composantes du tenseur de contrainte suivant z sont nulles :  $\sigma_{xz} = \sigma_{yz} = \sigma_{zz} = 0$ .
- Le déplacement  $(u_x, u_y, u_z)$  ne dépend que de la profondeur.

En accord avec les résultats expériementaux

#### Régime élastique :

$$\overline{\sigma} = \overline{C} : (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}_s)$$

• Calcul du gonflement libre (s) :

$$\begin{pmatrix} C_{33}^{b} & C_{34}^{b} & C_{35}^{b} \\ C_{34}^{b} & C_{44}^{b} & C_{45}^{b} \\ C_{35}^{b} & C_{45}^{b} & C_{55}^{b} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \mathcal{E}_{zz}^{b,hkl} \\ \mathcal{E}_{yz}^{b,hkl} \\ \mathcal{E}_{xz}^{b,hkl} \end{pmatrix} = \begin{matrix} s \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

 $G = \begin{pmatrix} 0 & 0 & g_{xz} \\ 0 & 0 & g_{yz} \\ 0 & 0 & g_{zz} \end{pmatrix}$ 

 $\underline{\varepsilon}_{s} = \frac{s}{3} \times \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$ 

# Ceaden modele mécanique : cas élastique

• Composante  $\varepsilon_{zz}$ 



#### Evolutions de $\varepsilon_{\prime\prime}$ et de $\varepsilon_{77}$ sont parfaitement décrites par le modèle

#### **Conclusion:**

- Validation du modèle mécanique grâce aux données mesurées par µ-DRX Laue.
- L'implantation en ions He crée un gonflement isotrope ( $\varepsilon_s$ ).

RX ET MATIÈRES

A. Richard. et al. J. Appl. Cryst. (2012) 45, 826-833.



# RÉSUMÉ



RX ET MATIÈRES

A. Richard, *et al.* J. Appl. Cryst. (2012) **45**, 826-833.

### MESURE DU GONFLEMENT LIBRE PAR DRX MACROSCOPIQUE θ/2θ

Pour 3 raies de Bragg, le gonflement libre  $\frac{s}{3}$  peut être déterminé facilement







RX ET MATIÈRES

Ceaden

A. Richard *et al.* NIMB. **326** (2014), 251 - 255

### **INFLUENCE DU DOMMAGE/FLUENCE SUR LA** DÉFORMATION DE LA ZONE IMPLANTÉE

#### DRX macroscopique $\theta/2\theta$ « poudre »

NIMB. 326 (2014), 251 - 255

Ceaden



### **EVOLUTION DU GONFLEMENT LIBRE AVEC LE** DOMMAGE : VALIDATION (I/II)



A. Richard et al.

NIMB. 326 (2014), 251 - 255

# <u>Ceaden</u> Evolui

### EVOLUTION DU GONFLEMENT LIBRE AVEC LE DOMMAGE : VALIDATION (II/II)



# 

### INTERACTIONS INTER-GRANULAIRES FAIBLES DANS CES CONDITIONS

#### $1 \times 10^{16} \, {}^{4}\text{He}^{+}/\text{cm}^{2}$



Développement de méthodes d'analyse d'images (clichés µ-DRX) dédiées

#### Résultats confirmés par des modélisations éléments finis

RX ET MATIÈRES

M. Ibrahim *et al.* J. Appl. Cryst. (2015) **48**, 990-999.

Grenoble | 03 Décembre 2015

M. Ibrahim, Thèse Paris-Est (2015)

### HR-XRD SUR GRAIN UNIQUE DANS UN POLYCRYSTAL UO<sub>2</sub> IMPLANTÉ EN IONS HE





1×10<sup>16</sup> <sup>4</sup>He<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>



Mise en évidence d'interférences entre zones (dans la profondeur) présentant des déformations différentes

Accès au profil de déformation  $\epsilon_{zz}$  en profondeur



H. Palancher *et al.* Appl. Phys. Lett, submitted

# Ceaden profil de déformation en profondeur

1×10<sup>16</sup> <sup>4</sup>He<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>



# Ceaden Profil de déformation en profondeur







# **RELAXATION EN TEMPÉRATURE (II/II)**



#### Recuit des déformations très proche entre échantillons implantés et auto-irradiés α

 R.C. Belin *et al.*,

 Grenoble | 03 Décembre 2015
 J. Nucl. Mater. 465 (2015) 407-417.
 PAGE 21

RX ET MATIÈRES

H. Palancher et al.

J. Nucl. Mater., submitted



## **MODIFICATIONS À HAUTES DOSES (I//II)**



# Ceaden modifications à hautes doses (II/II)

![](_page_22_Figure_1.jpeg)

À très hautes doses (> 0,8 dpa), l'implantation ne crée plus un gonflement isotrope (indépendant de l'orientation des grains) :

Dans une pastille auto-irradiée, des incompatibilités de déformation peuvent apparaitre.

![](_page_22_Picture_4.jpeg)

![](_page_23_Picture_0.jpeg)

#### Méthodologie :

Ceaden

- Utilisation de nombreuses techniques/instruments (ESRF, CRG, labo) de diffraction pour caractériser le comportement mécanique des couches UO<sub>2</sub> implantées en ions He : Vers une caractérisation 3D
- 2. Combinaison systématique mesure /calculs mécaniques.

#### Apport de la démarche

- 1. Détermination des conditions d'implantation représentatives de combustibles autoirradiés. De franches avancées ont été obtenues :
  - Comportement en température
  - Évolution en fonction de la fluence
- Proposition d'hypothèse de mécanisme pour expliquer le comportement de pastilles <sup>238</sup>PuO<sub>2</sub> auto irradiées.

![](_page_23_Picture_11.jpeg)

![](_page_23_Picture_12.jpeg)

![](_page_23_Picture_13.jpeg)

### **MERCI POUR VOTRE ATTENTION**