



HAL
open science

Détermination multiéchelles des propriétés mécaniques de combustibles nucléaires hétérogènes par microscopie acoustique et technique AFM résonante

Didier Laux, Richard Arinero, Franck Augereau, Gilles Despaux, Virginie Basini

► **To cite this version:**

Didier Laux, Richard Arinero, Franck Augereau, Gilles Despaux, Virginie Basini. Détermination multiéchelles des propriétés mécaniques de combustibles nucléaires hétérogènes par microscopie acoustique et technique AFM résonante. 17e Congrès Français de Mécanique, Aug 2005, Troyes, France. hal-04268303

HAL Id: hal-04268303

<https://hal.science/hal-04268303>

Submitted on 2 Nov 2023

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.

Détermination multiéchelles des propriétés mécaniques de combustibles nucléaires hétérogènes par microscopie acoustique et technique AFM résonante.

D.Laux^a, R.Arinerio^a, F.Augereau^a, G.Despaux^a, V.Basini^b

^a : Laboratoire d'Analyse des Interfaces et de Nanophysique. UMR CNRS 5011 .Université Montpellier II. CC082 . 34095 Montpellier.

^b : CEA Cadarache. DEC/SPUA/LMPC. Bât 717. 13108 Saint Paul-Lez- Durance.

Résumé :

L'utilisation couplée de la microscopie acoustique haute fréquence et de la microscopie à force atomique (AFM) dans le mode contact résonant a permis de mesurer les modules élastiques de combustibles nucléaires composites d'une échelle nanométrique à une échelle macroscopique. Grâce à la méthode AFM, basée sur l'enregistrement des spectres de résonance de la sonde, au contact de l'échantillon, et sur des lois d'étalonnage établies sur des matériaux étalons, les modules élastiques des inclusions de combustible et de la matrice métallique ont pu être évalués. Ces résultats ont été confirmés à une autre échelle grâce à des mesures réalisées par microscopie acoustique haute fréquence à 600 MHz. En utilisant des approches théoriques à l'ordre 1, les modules macroscopiques de ces composites sandwich ont pu être estimés, résultats corroborés par des mesures échographiques. Ces premiers résultats sont de première importance pour les codes de calcul visant à prédire le comportement de ces nouveaux combustibles en réacteur.

Abstract :

Using both high frequency acoustic microscopy, echography and resonant AFM methods, the elastic moduli of high heterogeneous nuclear fuel have been assessed from a nano to a macroscopic scale. With the AFM technique based on the resonant frequency of the cantilever and calibrations laws established on many materials, the elastic moduli of the metallic matrix and nuclear fuel inclusions have been estimated. These results have been confirmed thanks to high frequency acoustic microscopy around 600 MHz. Then, using first order theoretical approaches, the macroscopic properties of the whole sandwich composite have been estimated. All these results are coherent with measurements performed with echographic methods. These first results are of first interest for calculation codes used to predict the mechanical behaviour of nuclear composites in reactor core.

Mots clefs :

Microscopie acoustique ; Spectroscopie AFM ; Combustibles nucléaires ;

1. Introduction

Dans le cadre du nouveau réacteur expérimental Jules Horowitz, de nouveaux combustibles sont actuellement développés au CEA de Cadarache et dans l'usine CERCA de Romans. Ces combustibles sont des plaques composites constituées d'Aluminium dans lequel des particules uranium molybdène sont

dispersées [1]. Pour prévoir le comportement de ces plaques en réacteur des codes de calcul par homogénéisation périodique, qui permettent (connaissant les propriétés des différentes phases) d'évaluer les propriétés macroscopiques du composite, sont développés au CEA de Cadarache. D'un point de vue purement expérimental il est donc fondamental de se doter de méthodes spécifiques donnant accès aux propriétés locales des différentes phases en présence (Aluminium et particules U-Mo) ainsi qu'aux propriétés macroscopiques du composite. Ce genre d'approche permet de fournir les codes de calcul en données d'entrée et de vérifier les résultats théoriques. Dans cette publication notre attention se porte uniquement sur les propriétés élastiques de plaques non irradiées (module d'Young par exemple). Après une présentation des techniques expérimentales utilisées (microscopie acoustique et AFM), nous commenterons les premiers résultats obtenus.

2. La microscopie acoustique

Les constantes élastiques que nous cherchons à déterminer (module d'Young E et de cisaillement G) sont directement liées aux vitesses de propagation des ultrasons dans la matière par les relations suivantes. Dans ces expressions V_L représente la vitesse longitudinale et V_T la vitesse transverse. ρ est la masse volumique de l'échantillon.

$$G = \rho V_T^2 \quad (1)$$

$$E = \rho V_T^2 \frac{3V_L^2 - 4V_T^2}{V_L^2 - V_T^2} \quad (2)$$

Ainsi, si l'on mesure les vitesses de propagation des ondes longitudinales et transverses, on accède (moyennant la connaissance de ρ) aux modules élastiques. Pour les céramiques en particulier, la mesure de la vitesse des ondes transverses est plus difficile à cause de l'atténuation. C'est la raison pour laquelle nous préférons utiliser une onde de surface : l'onde de Rayleigh. La connaissance de la vitesse des ondes longitudinales et de la vitesse de l'onde de Rayleigh (V_R) permet de déduire V_T .

La détermination de V_L et V_R est assurée par l'utilisation d'un microscope acoustique dont le fonctionnement est détaillé ci-dessous.

Le terme « microscopie acoustique » regroupe deux aspects [2]: l'imagerie et la signature acoustique. Dans les deux cas, un cristal piézo-électrique déposé sur une ligne à retard en verre, saphir ou aluminium, est excité par une tension sinusoïdale. Le signal électrique, converti en onde mécanique par effet piézo-électrique, se propage dans la ligne à retard puis est focalisé au moyen d'un dioptre sphérique (Figure 1).

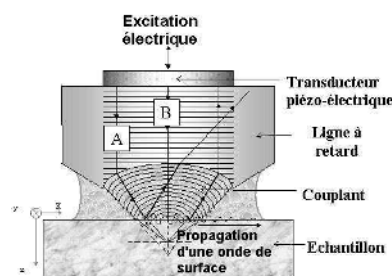


FIG. 1 - Schéma d'un capteur ultrasonore focalisant. Visualisation des trajets acoustiques

Compte tenu des fréquences utilisées (de 10 MHz à 2 GHz), l'onde mécanique créée appartient au domaine des ultrasons. Après propagation dans un liquide de couplage, le signal ultrasonore est réfléchi à la surface de l'échantillon et son amplitude dépend fortement des propriétés mécaniques de l'échantillon. Ainsi, si un balayage X-Y est réalisé, et si le signal reçu après réflexion est codé en couleurs, des images qualifiées "d'images acoustiques" sont acquises. La résolution dépend de la fréquence d'excitation du piézo-électrique. Elle varie d'une centaine de μm à 10 MHz à $1 \mu\text{m}$ à 1 GHz. En fait, comme la matière n'est pas opaque aux ultrasons, il est possible de réaliser des images "défocalisées". Ces images sont obtenues en focalisant le faisceau ultrasonore en sous-surface. Ce type d'images permet par exemple de révéler les grains de matière sans attaque chimique. On les qualifie parfois d'images de contraste.

Pour obtenir des résultats quantitatifs, nous utilisons la signature acoustique ou $V(z)$ qui est basée sur des interférences entre différentes ondes. Lorsque les ondes ultrasonores ont une incidence oblique, il existe des angles critiques qui permettent (comme en optique) la génération d'ondes rasantes évanescentes. D'un point de vue expérimental, la génération de ces différentes ondes rasantes est assurée par le dioptre sphérique judicieusement usiné dans le barreau de silice ou de saphir. Partant du point focal, le capteur est alors défocalisé, c'est-à-dire rapproché de l'échantillon à étudier. Des interférences entre les ondes de surface et l'onde spéculaire (incidence normale) sont observées : le signal reçu au cours de la défocalisation (le $V(z)$ ou signature acoustique) est pseudo-périodique amorti et comporte dans le cas le plus général trois périodicités puisqu'il existe trois ondes de surface. La périodicité la plus courte est due à l'onde de Rayleigh et la plus longue à l'onde longitudinale. La mesure des différentes périodes permet alors de déduire V_L , V_T et V_R .

Pour les matériaux pour lesquels le coefficient de Poisson est proche de 0.3 (céramiques, métaux...) et pour lesquels il est difficile de mesurer V_L par microscopie acoustique, le module d'Young est obtenu directement avec V_R de la façon suivante [3]:

$$E = 3\rho V_R^2 \quad (3)$$

3. Technique de résonance AFM en mode contact

La fréquence de résonance d'un levier d'AFM en mode contact est directement reliée au module d'Young du matériau analysé [4]. Pour comprendre simplement le problème on peut modéliser en première approche le système par une masse effective m^* oscillant entre deux ressorts. En réalité, ce modèle élémentaire ne prédit pas exactement la fréquence de résonance du système. Par exemple les harmoniques ne sont pas prises en compte. Même si de meilleurs résultats peuvent être obtenus en prenant en compte la raideur du contact, ou en réalisant des simulations par éléments finis, de nombreux paramètres rendent la simulation difficile (forme exacte de la pointe par exemple). C'est la raison pour laquelle nous avons choisi de développer une méthode consistant à mesurer la fréquence de résonance du levier AFM sur des échantillons étalons [5]. Grâce à ces mesures, une courbe d'étalonnage entre la fréquence de résonance et le module d'Young du matériau est obtenue. Les échantillons étalons analysés sont les suivants : polyuréthane (pu3420 et pu3558), polyester, polyéthylène (pe1000), pmma, verre (pyrex®), calcite, silicium, saphir...

D'un point de vue pratique, la force entre le levier et l'échantillon est détectée par un faisceau laser et des photodiodes. Une boucle de contre réaction maintient une force de contact constante. En même temps, une excitation sinusoïdale est imposée au levier grâce à un potentiel électrostatique. Lorsque la fréquence d'excitation correspond à une fréquence propre du système levier-échantillon, une résonance est observée (Figure 2).

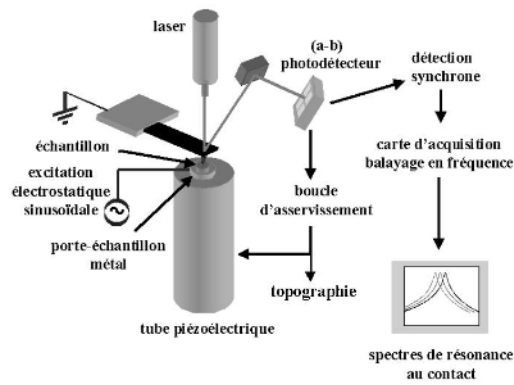


FIG. 2 – Spectroscopie AFM en mode contact

4. Résultats expérimentaux

4.1. Analyse par microscopie acoustique haute fréquence et échographie

En utilisant une fréquence acoustique proche de 600 MHz, nous avons pu mesurer la vitesse de l'onde de Rayleigh dans l'aluminium de la gaine ainsi que dans l'aluminium constituant la matrice de la partie fissile (« Meat »).

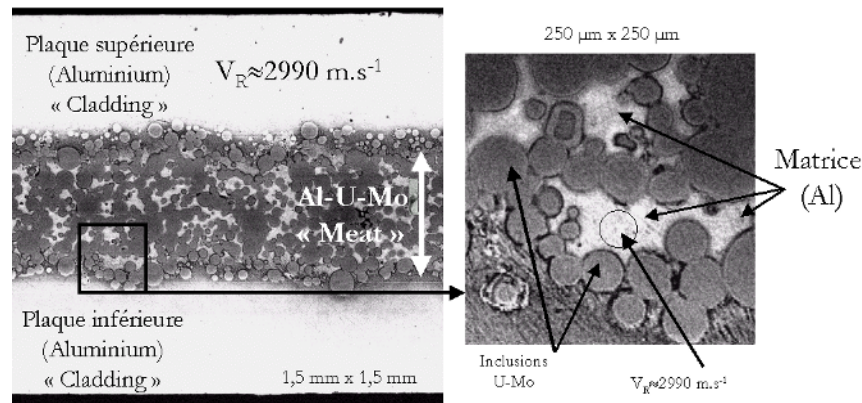


FIG. 3 – Images acoustiques prise sur une coupe et bilan de l'étude à 600 MHz

Dans les deux cas nous obtenons $V_R = 2990 \pm 10 \text{ m.s}^{-1}$ ce qui montre que les propriétés mécaniques des deux parties considérées sont identiques. Comme dans la signature acoustique le mode longitudinal n'est pas suffisamment efficace, nous avons utilisé la relation (3) et une masse volumique valant 2698 kg.m^{-3} pour calculer le module d'Young. On trouve alors $E_{Al} = 72 \pm 5 \text{ GPa}$. L'incertitude tient compte de l'hypothèse faite sur le coefficient de Poisson dans la relation 3. Pour vérifier ce résultat, nous avons effectué de l'échographie classique à 40 MHz en considérant un écho réfléchi sur la face supérieure de l'aluminium et un écho réfléchi à l'interface « Cladding » « Meat ». En considérant que l'épaisseur de la plaque d'aluminium vaut environ $380 \mu\text{m}$, nous avons déduit : $V_L(\text{Cladding}) = 6350 \pm 200 \text{ m.s}^{-1}$. En utilisant cette vitesse et la vitesse de l'onde de Rayleigh mesurée précédemment, on obtient alors $E_{Al} = 74 \pm 2 \text{ GPa}$ ce qui montre que

L'analyse par microscopie acoustique haute fréquence donnait un résultat correct. Dans les inclusions, aucune mesure de vitesse de l'onde de Rayleigh n'a été exploitable.

Dans un second temps, en réalisant de l'échographie en transmission nous avons mesuré la vitesse longitudinale moyenne dans l'échantillon complet (Cladding / Meat / Cladding). La vitesse obtenue vaut $4680 \pm 100 \text{ m.s}^{-1}$. Connaissant alors l'épaisseur de la partie « Meat » (environ $550 \mu\text{m}$), nous avons alors déduit la vitesse longitudinale dans la partie fissile. On trouve $V_L = 3432 \pm 200 \text{ m.s}^{-1}$. En supposant alors que le coefficient de Poisson de la partie fissile est proche de 0,3 il est possible de montrer que le module élastique peut être estimé par la relation suivante :

$$E = 0,743\rho V_L^2 \quad (4)$$

Sachant que la masse volumique des particule UMo vaut 17880 kg.m^{-3} et que la partie fissile est composée de 50 % d'Aluminium et de 50 % d'U-Mo, la masse volumique de la partie fissile vaut 10289 kg.m^{-3} , ce qui conduit à $E_{\text{meat}} \approx 90 \pm 20 \text{ GPa}$. Enfin, grâce aux modèles série et parallèle de Voigt et Reuss, nous avons estimé les modules élastiques macroscopiques de l'échantillon : $E_x \approx E_y \approx E_z \approx 80 \pm 20 \text{ GPa}$. Ainsi nous montrons une bonne isotropie des plaques Al-U-Mo.

4.2. Analyse par spectroscopie AFM en mode contact

Les spectres de résonance obtenus sur les échantillons étalons, sur deux céramiques connues (UO_2 et WC) et sur les particules U-Mo sont présentés ci-dessous.

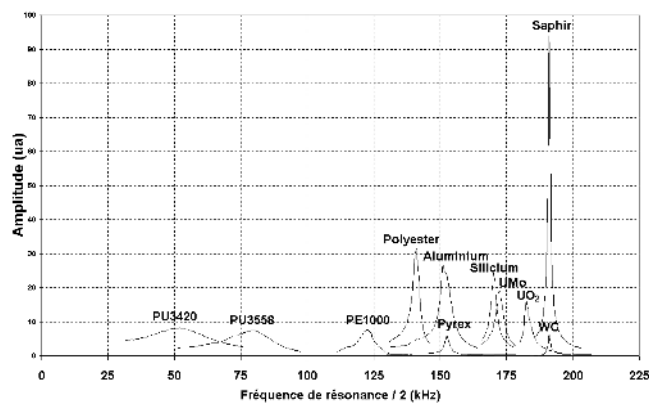


FIG. 4 - Courbes de résonance obtenues par AFM en mode contact

Pour les céramiques UO_2 et WC, il est difficile de relier les fréquences de résonance à un module d'Young. En effet, à l'échelle d'analyse, la caractérisation est faite à l'intérieur d'un seul grain. Par conséquent, cette fréquence de résonance est liée aux constantes élastiques du grain et non au module élastique macroscopique de la céramique. Cependant, lors de plusieurs mesures en différents endroits, les fréquences de résonance varient peu. Donc en première approximation nous relierons ces fréquences au module de la céramique. Sur la figure suivante nous avons reporté tous les étalons, l'aluminium (grâce au module d'Young évalué par microscopie acoustique) ainsi que l'U-Mo que nous avons positionné au mieux sur la courbe d'étalonnage. Ceci conduit à $E_{\text{U-Mo}} = 180 \pm 20 \text{ GPa}$ (Figure 5).

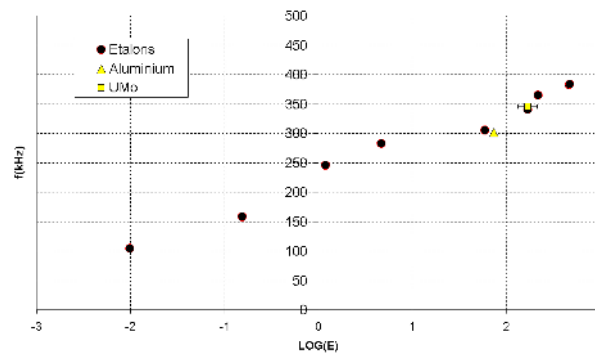


FIG. 5 - Loi $f = \text{LOG}(E)$ pour les étalons, l'aluminium et positionnement des particules U-Mo

Sachant que les inclusions d'U-Mo sont constituées de 7 % de Molybdène de module d'Young 325 GPa et de 93 % d'uranium de module d'Young voisin de 180 GPa, le résultat obtenu par AFM est tout à fait cohérent. Grâce au module d'Young que nous venons d'estimer nous pouvons maintenant évaluer le module d'Young de la partie fissile en utilisant les approximations de Voigt et Reuss. On obtient alors l'encadrement suivant : $100 \text{ GPa} < E_{\text{meat}} < 130 \text{ GPa}$, qui est conforme à ce que l'on avait obtenu par méthodes acoustiques.

5. Conclusion

Dans cette pré-étude de combustibles composites Al-U-Mo, nous avons montré la complémentarité entre des méthodes acoustiques qui donnent accès aux modules élastiques sur des zones allant de quelques dizaines de microns (signature acoustique haute fréquence) au centimètre (échographie classique). Les premières conclusions concernant le combustible composite sont : bonne isotropie et modules élastiques voisins de 80 GPa. Pour approfondir l'étude il serait souhaitable de disposer maintenant de plusieurs échantillons pour affiner les résultats, d'analyser l'influence des modes de fabrication... Utiliser d'autres fréquences ultrasonores et refaire des courbes de résonance avec des pointes plus dures (diamant par exemple alors que cette étude a été menée avec une pointe Pt Ir5) serait aussi envisageable.

References

- [1] A. Leenaers, S. Van den Berghe, E. Koonen, C. Jarousse, F. Huet, M. Trotabas, M. Boyard, S. Guillot, L. Sannen and M. Verwerft. Post-irradiation examination of uranium-7 wt% molybdenum atomized dispersion fuel. *Journal of Nuclear Materials*, Volume 335, Issue 1, 1 October 2004, Pages 39-47
- [2] A. Briggs., *Acoustic microscopy*, Clarendon, Oxford, 1992.
- [3] D.Laux, G.Despau, D.Baron. Application des méthodes micro-acoustiques à la caractérisation des propriétés locales du combustible irradié. *Congrès Matériaux 2002*. Tours.
- [4] K. Yamanaka, S. Nakano, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 35, p.3787, 1996.
- [5] R. Arinéro, G. Lévêque, *Rev. Sci. Instrum.*, 74, p.104, 2003.