

CFA '18 LE HAVRE ■ 23-27 avril 2018
14^{ème} Congrès Français d'Acoustique



**Imagerie par Microscopie Acoustique Haute Résolution de
l'Interface Pastille-Gaine dans un Crayon Combustible**

H. Saikouk^a, D. Laux^a, E. Le Clézio^b, B. Lacroix^c, K. Audic^d, R. Largeton^d, E.
Federici^c et G. Despaux^b

^aUniversité de Montpellier - IES, 860 rue de St Priest CC 05003, 34095 Montpellier, France

^bUniversité de Montpellier - IES, 860 rue de saint priest, 34095 Montpellier, France

^cCEA CADARACHE, Cadarache, 13108 St Paul, 13108 St Paul, France

^dEDF R&D Dept MMC/T25, Avenue des Renardières Ecuelles 77818 MORET SUR LOING, 77818
Moret Sur Loing, France
hajar.saikouk@umontpellier.fr

Les crayons combustibles au sein des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) sont constitués de pastilles de céramique (UO_2 ou $(\text{U}, \text{Pu}) \text{O}_2$) empilées dans des gaines en alliage de zirconium, le Zircaloy. Avant l'irradiation, il existe un jeu de fabrication entre les pastilles et la gaine de l'ordre d'une centaine de microns. Au cours de l'irradiation, ce jeu est rapidement réduit ou totalement rattrapé du fait des différentes déformations que les pastilles et la gaine subissent. La nature du contact entre la pastille et la gaine n'étant pas homogène, une caractérisation, non destructive, fine et locale à haute résolution ($10 \mu\text{m}$), avec une distribution axiale, azimutale et également radiale, est nécessaire pour mieux connaître l'évolution de l'état du crayon en fonction du taux de combustion. C'est dans ce contexte que l'Institut d'Electronique et des Systèmes UMR CNRS 5214 de l'Université de Montpellier développe, dans le cadre d'une collaboration avec le Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, un microscope acoustique haute résolution destiné, à terme, à être introduit dans une cellule de haute activité au LECA-STAR à Cadarache. Ce microscope, possédant un transducteur ultrasonore avec une lentille de focalisation, est adapté à l'analyse de l'interface Pastille-Gaine et permettra d'imager la face interne de la gaine d'un crayon irradié depuis la surface. Cet article présentera ce nouveau type de microscope et les premiers résultats obtenus en laboratoire sur gaine non irradiée.

1 Introduction

Dans un réacteur à eau pressurisée (REP), la fission des noyaux d'uranium produit de la chaleur qui transforme de l'eau en vapeur via trois circuits (primaire, secondaire et tertiaire) et met en mouvement une turbine reliée à un alternateur pour produire de l'électricité [1]. Dans le circuit primaire, l'eau sous pression (donc à l'état liquide) est à la fois le caloporteur et le modérateur. Ce type de réacteur est le plus répandu dans le monde, représentant environ 55 % des réacteurs installés. EDF possède 58 REP en France [2]. Le cœur du réacteur, où se déroule la fission nucléaire, peut contenir plus de 11 millions de pastilles [3] d'oxyde d'uranium (céramique UO_2), de combustible à oxyde mixte (MOX composé d'oxyde d'uranium et d'oxyde de plutonium fissile) ou de combustible gadoliné. Le combustible (initialement sous forme de poudre) une fois pressé et fritté se retrouve conditionné en cylindres de diamètre 8,192 mm et d'une hauteur voisine de 13 mm. Ces pastilles de combustible sont ensuite empilées dans des tubes (gainés) en alliage de zirconium faisant environ 4 m de long [4] (Voir la figure 1 (a) et (b)).

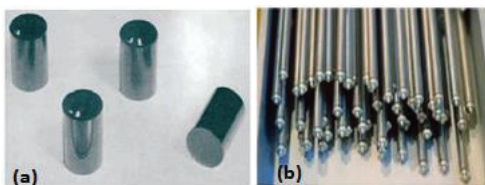


Figure 1: (a) Pastilles [5] ; (b) Crayon combustible avec gaines en alliage de zirconium [6].

Avant l'irradiation, il existe un jeu de fabrication entre les pastilles et la gaine de l'ordre d'une centaine de microns, mais au cours de l'irradiation, ce jeu diminue progressivement [7] (voir la figure 2) sous les effets combinés des phénomènes de gonflement subis par le combustible et du fluage de la gaine vers le combustible (comportement élasto-viscoplastique de la gaine sous le différentiel de pression entre le caloporteur et la pression interne du crayon). A chaud, au cours du 2 ou 3^{ème} cycle d'irradiation du crayon combustible, le jeu pastille-gaine est fermé (NB : la cinétique de fermeture du jeu pastille-gaine dépend du type de gainage, du combustible et de l'historique de puissance subi par le crayon combustible). Cependant, au retour à froid, le jeu peut se ré-ouvrir. A plus fort taux de combustion (généralement au-delà du 3^{ème} cycle d'irradiation) une couche de zircone interne de l'ordre

de $10 \mu\text{m}$ se développe par oxydation pouvant conduire à un collage chimique entre la pastille et la gaine. Au retour à froid, cette couche de collage peut contribuer à une non-réouverture du jeu pastille-gaine.

Afin de caractériser l'évolution en fonction du taux de combustion de l'interface pastille-gaine, à l'heure actuelle, seuls des examens à caractère destructif (exemple : métallographie), après découpe des crayons, permettent la visualisation de cette zone. Ils nécessitent une préparation préalable des échantillons en cellule de haute activité, ce qui limite le nombre d'essais et de mesures. L'objectif de cette étude vise à démontrer que le contrôle et/ou la caractérisation de l'interface pastille-gaine par microscopie acoustique haute résolution permet une caractérisation expérimentale non destructive des crayons combustibles. Celle-ci sera réalisée après irradiation et retour à froid.

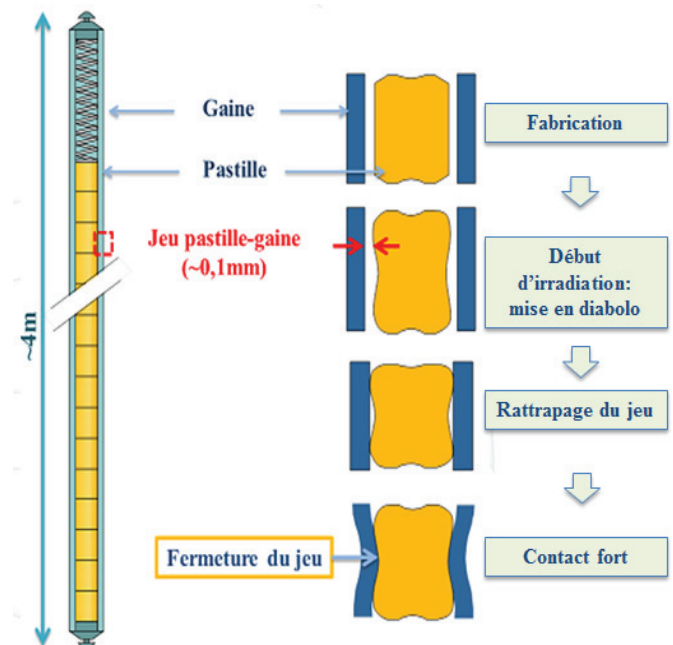


Figure 2: Réduction du jeu entre la pastille et la gaine pendant l'irradiation.

Dans ce travail, l'échantillon à imager, la gaine, possède une forme tubulaire. Le microscope devra donc prendre en considération cette complexité de la structure de l'échantillon. Dans le présent document, nous proposons de décrire un microscope acoustique haute résolution conçu pour étudier l'interface pastille-gaine d'une manière non-destructive.

2 Microscopie acoustique haute résolution

Le principe général de la microscopie acoustique est présenté dans la figure 3 [8]. Un signal électrique est envoyé à un élément piézoélectrique en contact avec une ligne à retard en silice permettant de générer une onde ultrasonore de haute fréquence. Cette dernière se propage jusqu'à une lentille acoustique sphérique positionnée à l'extrémité de la ligne à retard et entraînant une focalisation du faisceau acoustique dans l'échantillon après propagation dans un milieu de couplage liquide [9]. Les ondes réfléchies sont ensuite renvoyées à l'élément piézoélectrique où elles sont, par réciprocity, converties en signaux électriques. Le microscope acoustique développé dans la présente étude fonctionne à fréquence centrale de 150 MHz permettant l'obtention d'images 2D avec une résolution latérale de quelques dizaines de microns.

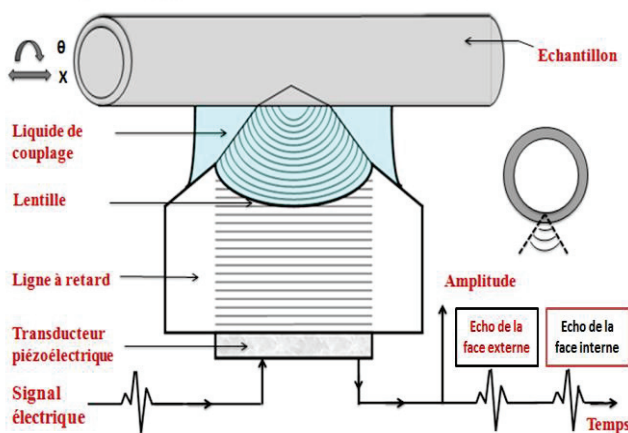


Figure 3: Le principe général de la microscopie acoustique.

3 Description du dispositif ultrasonore

3.1 Le banc mécanique

Afin de réaliser l'image de la face interne de la gaine d'une façon non destructive, la structure du système joue un grand rôle. Le capteur ultrasonore, comportant la lentille de focalisation, qui constitue le cœur du microscope acoustique [10] doit être positionné à une distance constante de la gaine, la liaison entre les deux étant assurée par un liquide couplant. De plus, le capteur est conçu de façon à être lié à une unité motorisée, composée de deux moteurs permettant des déplacements horizontaux afin de positionner le transducteur relativement à la gaine et d'acquérir les données tout au long d'une de ses génératrices. Leur résolution, de l'ordre de quelques μm , permettra d'optimiser la qualité des images. Afin d'éviter une rotation du capteur compliquant le dispositif et le maintien du couplant, l'acquisition des données circonférentielles sera réalisée via la rotation de la gaine pilotée par un moteur rotatif (Voir figure 4).

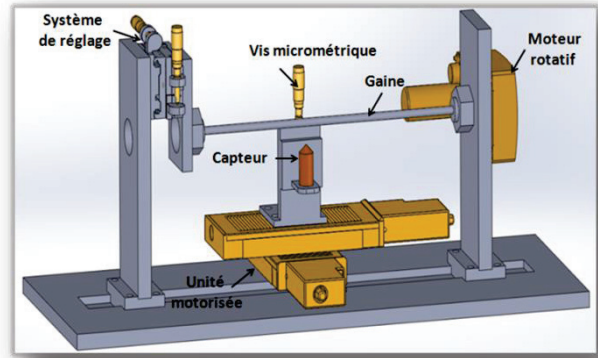


Figure 4: Prototype du système d'imagerie circulaire.

3.2 Système d'acquisition

Le système d'acquisition des données possède les composants suivants :

- Une carte d'acquisition Agilent Acqiris DC152, jouant le rôle d'un numériseur, avec 2 GHz de bande passante échantillonnant à 2 Géc/s sur les deux voies d'entrée ou à 4 Géc/s sur une seule voie d'entrée. Elle est caractérisée par une résolution de 10 bits.
- Un générateur récepteur d'impulsions pour microscope acoustique.
- Deux logiciels pour permettre l'acquisition de données et le traitement du signal et de l'image.

4 Etude de la résolution du microscope acoustique

De manière à quantifier la résolution du dispositif, des échantillons de référence ont été conçus, au sein de la salle blanche CTM de l'Université de Montpellier à l'IES, par photolithographie de résine sur des substrats en verre. Le but étant de simuler l'imagerie de l'interface pastille-gaine dans une configuration plane, le choix de la géométrie et des matériaux constituant l'échantillon de référence doit être considéré avec attention. Comme l'épaisseur de la gaine est de $570 \mu\text{m}$, le substrat constituant le support de l'échantillon de référence doit donc avoir une épaisseur comparable.

Dans les conditions de fabrication imposées par la salle blanche, les matériaux choisis sont représentatifs du coefficient de réflexion existant au niveau des interfaces Zircaloy-4/ UO_2 . Ce choix influencera directement les contrastes visualisés sur les images acoustiques. En première approximation, les coefficients de réflexion d'ondes planes au niveau des différentes interfaces du crayon combustible et de l'échantillon de référence en présence du liquide de couplage sont présentés dans la figure 6. Le tableau 1 présente les impédances acoustiques du Zircaloy-4, de l'oxyde d'uranium, du verre et de la résine.

Tableau 1: Impédances acoustiques.

Matériaux	Densité (g/cm ²)	Vitesse longitudinale (m/s)	Impédance acoustique (MRay)
Zircaloy-4	6.56	4715	30.9
UO2 poreux à 20%	10.4	5180	53.8
Verre	2.24	6000	13.4
Résine	2.5	4300	10.75

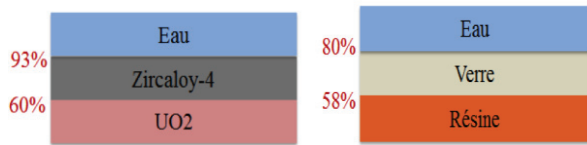


Figure 6: Coefficients de réflexion d'ondes planes au niveau des différentes interfaces du crayon combustible et de l'échantillon de référence.

Pour l'étude de la résolution, il a été choisi de déposer la résine sur un substrat en verre (Figure 7 (a)) sous le motif «IES» (Figures 7 (b)) dont la largeur du trait de lettrage varie entre 30 et 60 μm . Les images sont réalisées à partir de la face arrière de l'échantillon, conduisant à une distance parcourue par les ultrasons de 500 μm .

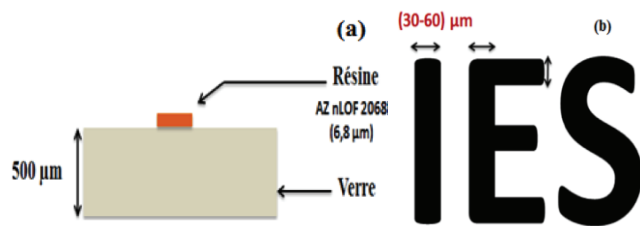


Figure 7 : Représentation (a) du dépôt de la résine et (b) de la résolution du trait de lettrage.

Les images ultrasonores obtenues, présentées sur la figure 8, démontrent que le capteur réalisé et le traitement du signal associé permettent d'imager des structures avec une résolution latérale meilleure que 30 μm .

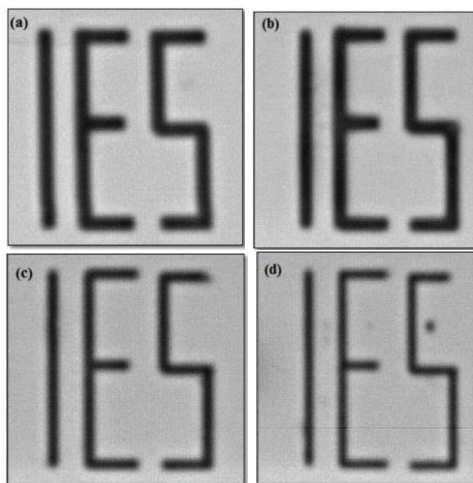


Figure 8: Images ultrasonores du motif «IES» en résine pour un trait de lettrage de (a) 60 μm , (b) 50 μm , (c) 40 μm (d) 30 μm .

Comme attendu, la largeur du trait mesurée sur l'image acoustique est néanmoins de l'ordre de 30 μm , largeur de la tache focale. Ces essais confirment que la résolution latérale du dispositif est de l'ordre de 30 μm sur échantillon Verre/Résine et que la fréquence choisie permet de visualiser des structures fines d'épaisseur inférieure à 7 μm .

5 Résultats expérimentaux sur gaine

La présente section expose les résultats obtenus au cours des premières expériences réalisées sur des gaines en Zircaloy-4 d'une longueur de 20 cm et d'un diamètre de 9.5 mm.

Les premiers essais montrent que les échos des faces externe et interne de la gaine sont parfaitement séparés, et d'amplitudes comparables. La figure 10 présente le signal ultrasonore acquis par le système lorsque le point de

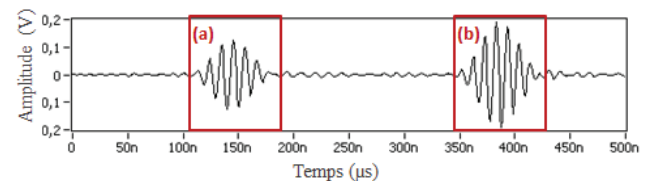


Figure 10 : Signal acquis par l'élément piézoélectrique (a) écho de surface (b) écho de l'interface.

focalisation du capteur est positionné à l'intérieur de la gaine de manière à visualiser simultanément l'écho de surface (a) et l'écho de l'interface (b).

De plus, en réalisant des rotations complètes de la gaine, le système permet la reconstruction des images 2D de la surface extérieure de la gaine ou de sa face interne (voir la figure 11 (a) et (b)).

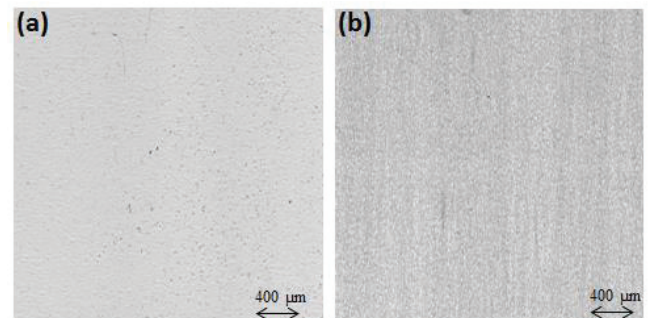


Figure 11: Image de (a) la face externe et (b) la face interne d'une gaine vierge.

Pour évaluer la sensibilité du dispositif ultrasonore lors d'une modification de l'interface interne de la gaine, une partie d'une gaine a été chargée par de la colle en peau interne. Une seconde gaine vierge a été chargée par un mélange de colle et de billes de verre de 90 μm de diamètre. Les images ultrasonores respectives sont présentées sur les figures 12(a) et 12 (b).

Les parties les plus sombres de la figure 12 correspondent à des zones où la colle a été déposée. Lors de la réflexion, l'énergie ultrasonore est transmise dans cette couche absorbante, générant un coefficient de réflexion plus faible.

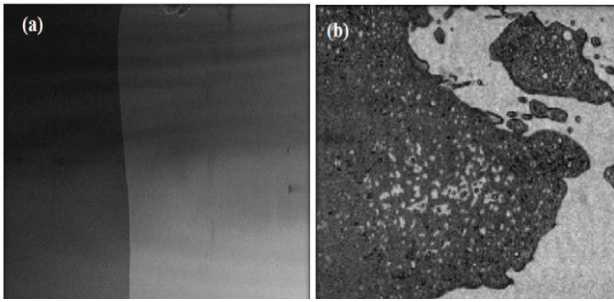


Figure 12: Images de la face interne de la gaine contenant (a) une couche de colle ; (b) un mélange de colle et de billes de 90 μm .

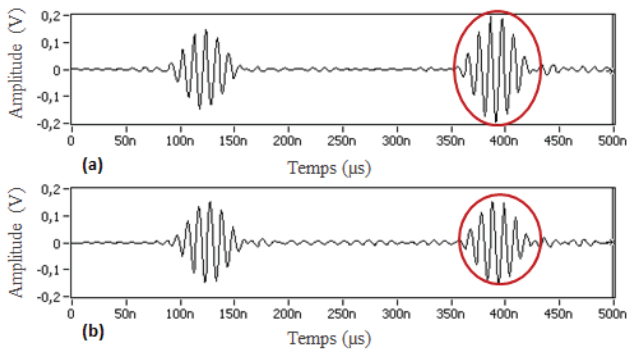


Figure 13: (a) Amplitude de l'écho au niveau de l'interface Zy-4/air (b) l'amplitude de l'écho au niveau de l'interface Zy-4/colle.

L'obtention d'un signal acoustique avec une amplitude faible est alors présenté sur la figure 13 (b). Le coefficient de réflexion sur la partie droite de la figure 12 (a) et l'amplitude du signal acoustique sur la figure 13 (a) sont cependant plus importants car l'énergie ultrasonore est intégralement réfléchi sur l'interface Zy-4/air. De plus, sur la figure 12 (b), la présence des points noirs sur l'image représente le contact entre les billes de verre de 90 μm et la face interne de la gaine.

6 Conclusion

Dans le présent document, la microscopie acoustique, qui est une technique non destructive, est utilisée pour étudier l'interface pastille-gaine d'un crayon combustible. Un dispositif ultrasonore à haute fréquence, lié à un système d'acquisition électronique, a permis la réalisation d'images avec une résolution latérale de 30 μm au niveau de la face interne de la gaine. Les premiers résultats ont clairement démontré la capacité du système à détecter les modifications de l'interface en termes de contact ou d'identification de défauts. Ce système d'imagerie ultrasonore, constituant une innovation et une avancée

importante dans la caractérisation haute résolution en profondeur des surfaces courbes, est destiné à terme à être introduit dans une cellule chaude de haute activité au LECA-STAR du CEA-Cadarache.

Remerciements

Nous tenons à remercier EDF et FRAMATOME pour leur appui technique et leur contribution financière à cette étude.

Références

- [1] CEA. "Le fonctionnement d'un réacteur nucléaire". Dans : Livret CEA No6 (2002).
- [2] J. Julien. Modélisation multi-échelle du couplage physico-chimie-mécanique du comportement du combustible à haute température des réacteurs à eau sous pression. Université de Provence - Aix - Marseille I, 2008.
- [3] J. Louis Basdevant, J. Rich, M. Spiro, Energie nucléaire. Les éditions de l'école polytechnique, 2006, pp. 228-229.
- [4] D. Laux, G. Despaux, D. Baron, V. Rondinella, W. De Weerd, M. Laurie. Microscopie acoustique pour l'étude des combustibles nucléaires irradiés. Techniques de l'ingénieur, 2014.
- [5] Nuclear fuels. CEA Saclay and Groupe Moniteur (Éditions du Moniteur), Paris, 2009.
- [6] <http://www.areva.com/>
- [7] D. Laux, W. de Weerd, D. Papaioannou, S. Kitajima, V.V. Rondinella, G. Despaux, Scanning acoustic microscope for mechanical characterization and density estimation of irradiated nuclear fuel. Progress in Nuclear Energy 72 (2014) 63-66.
- [8] Briggs, G.A.D, 1992. Acoustic Microscopy. Clarendon Press, Oxford.
- [9] D. Laux, D. Baron, G. Despaux, A.I. Kellerbauer, M. Kinoshita, Determination of high burn-up nuclear fuel elastic properties with acoustic microscopy. Journal of Nuclear Materials 420 (2012) 94-100.
- [10] P.A. Meignen, E. Le Clézio, G. Despaux. High frequency acoustic sensor dedicated to the high resolution measurement of mechanical properties. ScienceDirect, Physics Procedia 70 (2015), 424-427.