



HAL
open science

Imagerie par microscopie acoustique haute résolution en profondeur de la surface interne d'une gaine de crayon combustible de type REP

Hajar Saikouk

► **To cite this version:**

Hajar Saikouk. Imagerie par microscopie acoustique haute résolution en profondeur de la surface interne d'une gaine de crayon combustible de type REP. Electronique. Université Montpellier, 2018. Français. NNT : 2018MONTTS101 . tel-02160516

HAL Id: tel-02160516

<https://theses.hal.science/tel-02160516>

Submitted on 19 Jun 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.

THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE MONTPELLIER

En Électronique

École doctorale : Information, Structures, Systèmes

Unité de recherche Matériaux, Micro-capteur et Acoustique

Imagerie par microscopie acoustique haute résolution en profondeur de la surface interne d'une gaine de crayon combustible de type REP

Présentée par Hajar SAIKOUK

Le 23 novembre 2018

Sous la direction de Gilles DESPAUX et Didier LAUX

Devant le jury composé de

Nicolas WILKIE-CHANCELLIER, Professeur, SATIE, Université de Cergy-Pontoise

Pascal PAREIGE, Professeur, LOMC, Université du Havre

Mostafa MRABTI, Professeur, LIPI, Université de Fès - USMBA, Maroc

Karine AUDIC, Ingénieur chercheur, EDF R&D

Brigitte LACROIX, Ingénieur chercheur, CEA Cadarache

Rodrigue LARGENTON, Ingénieur chercheur, EDF R&D

Eric FEDERICI, Ingénieur chercheur, CEA Cadarache

Emmanuel LE CLEZIO, Professeur, IES, Université de Montpellier

Didier LAUX, Maître de conférence, IES, Université de Montpellier

Gilles DESPAUX, Professeur, IES, Université de Montpellier

Rapporteur

Rapporteur

Président

Examineur

Examineur

Membre invité

Membre invité

Co-Encadrant

Co-Directeur de thèse

Directeur de thèse



UNIVERSITÉ
DE MONTPELLIER

Remerciements

Ce travail de thèse s'est déroulé à l'Institut d'Electronique et des Systèmes de l'Université de Montpellier au sein du département Capteurs, Composants et Systèmes.

Je voudrais avant toute chose remercier Dieu le tout puissant de m'avoir donné le courage, la force et la patience d'achever ce travail.

Je tiens à remercier toutes les personnes qui ont participé, de près ou de loin, à la réalisation de ce mémoire.

Mes remerciements s'adressent particulièrement à mes encadrants de thèse Gilles DESPAUX, Didier LAUX et Emmanuel LE CLEZIO pour m'avoir confié ces travaux de recherche et fait bénéficier de leurs connaissances et de leurs savoir-faire. Tout au long de ce travail, ils ont su m'apporter un soutien constant, une disponibilité, une écoute, une confiance et des conseils précieux et avisés à la hauteur de leurs compétences et de leurs réelles qualités humaines.

Ils s'adressent aussi à Brigitte LACROIX et Eric FEDERICI, ingénieurs de recherche au CEA de Cadarache qui ont également encadré ce travail de recherche. Leur écoute, leurs connaissances, leurs critiques et leurs conseils constructifs m'ont guidé tout au long de cette thèse.

Ils s'adressent également à Karine AUDIC et Rodrigue LARGENTON, ingénieurs de recherche à EDF R&D. Leur contribution, leur détermination, leur confiance, leurs conseils pertinents et leur regard opérationnel ont guidé ce travail jusqu'au bout.

Je souhaite également remercier Mostafa MRABTI, mon professeur au cycle d'ingénieur à l'ENSA de Fès, pour l'honneur qu'il m'a fait de présider mon jury.

Je suis très reconnaissante aux professeurs Pascal PAREIGE et Nicolas WILKIE CHANCELLIER d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse, et les remercie encore une fois pour leurs conseils éclairés sur les méthodes utilisées durant ce travail. J'aimerais plus globalement saluer la qualité des discussions auxquelles j'ai pris un grand plaisir à participer avec chacun des membres du jury.

Ma gratitude va également au Professeur Ghizlane KHAISSIDI qui m'a donné l'occasion de découvrir le monde de la recherche.

J'adresse également tous mes remerciements pour leur soutien quotidien à mes collègues du laboratoire avec qui j'ai passé le plus clair de mon temps.

Un petit clin d'œil à mes amis qui m'ont suivie et encouragée depuis le début de mes études. Merci également à mes amies de l'association pour leurs soutiens et leurs présences.

Enfin, un grand merci à ma mère Chadia et mon père Mohammed qui m'inspirent chaque jour par leur force et par leur détermination. Merci à mon frère Anass et ma sœur Ahlam pour leurs soutiens inconditionnels. Merci encore une fois pour m'avoir soutenu tout au long de ces trois années et sans lesquels ce travail ne serait pas ce qu'il est.

Résumé

Les crayons combustibles au sein des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) sont constitués de pastilles de céramique (UO_2 ou $(\text{U-Pu})\text{O}_2$) 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 subissent les pastilles et la gaine. La connaissance de la nature de ce contact pastille-gaine à chaud, nécessaire pour comprendre les phénomènes et valider les modélisations de l'évolution de l'état de l'interface en fonction du taux de combustion, est accessible aujourd'hui exclusivement à partir de mesures destructives effectuées en laboratoire de haute activité, après retour à froid des combustibles. Pour obtenir un plus grand nombre d'informations sur des zones d'intérêt étendues, ou sur un tronçon de crayon avant refabrication pour ré-irradiation en réacteur expérimental, un moyen de caractérisation non destructif de l'interface pastille-gaine est nécessaire. 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, et en partenariat avec EDF et Framatome, un microscope acoustique adapté aux géométries cylindriques. Le travail mené au cours de cette thèse inclut la conception et l'adaptation d'une tête de mesure sur un banc prototype et la démonstration de la faisabilité de l'acquisition d'images haute résolution (quelques dizaines de microns) sur tubes de gaine, l'enjeu étant de conserver la focalisation sur l'ensemble des zones imagées sur un même tube de diamètre externe de l'ordre de 10 mm et de longueur de 100 à 500 mm. La difficulté à reproduire les conditions de contact pastille-gaine en laboratoire ont orienté le choix des échantillons simulants, élaborés à partir de tubes de gaine avec ou sans zircon et chargés localement de colle. Les acquisitions réalisées sur ces échantillons simulants montrent la capacité de la méthode à détecter les changements de structure de la surface interne de la gaine. La mesure est ainsi sensible à la présence d'une couche de zircon interne d'épaisseur de 10 μm , et à la présence de matériau adhérent à l'intérieur du tube. Ces résultats montrent l'intérêt de poursuivre ces études, pour améliorer grâce à du traitement du signal l'interprétation des images avec pour objectif final l'adaptation de la méthode et sa qualification sur un banc sur crayon irradié.

Titre : Imagerie par Microscopie Acoustique Haute Résolution en profondeur de la surface interne d'une gaine de crayon combustible de type REP.

Mots-clés : *Microscopie acoustique haute fréquence, Imagerie en profondeur Haute-résolution, Crayon combustible, Interaction Pastille-Gaine, Examen non destructif.*

Abstract

Pressurized Water Reactor (PWR) fuel rods are made of ceramic pellets (UO_2 , $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ or gadolinium fuel) assembled in a zirconium alloy cladding tube. By design, an initial gap, filled with helium, exists between these two elements. However during irradiation this gap decreases gradually, on the one hand, owing to a variation in cladding diameter, due to creepdown caused by pressure from the coolant, and, on the other hand, increased pellet diameter, due to thermal expansion, and swelling. In hot conditions, during the second or third cycle of irradiation, the pellet/cladding gap is closed. However, during the return to cooler conditions, the gap can reopen. At a high burnup (generally beyond the 3rd cycle of irradiation) an inner zirconia layer of the order of 10 to 15 μm is developed by oxidation leading to a chemical bonding between the pellet and the cladding. This bonding layer may contribute to a non-reopening of the pellet-cladding gap. Currently, only destructive examinations, after cutting fuel rods, allow the visualization of this area, however, they require a preliminary preparation of the samples in a hot cell. This limits the number of tests and measurements on the fuel rods. In this context, the Institute of Electronic and Systems of Montpellier University (IES - UMR CNRS 5214), in collaboration with the Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA), Electricité de France (EDF) and Framatome, is developing a high frequency acoustic microscope adapted to the control and imaging of the pellet/cladding interface by taking into account the complexity of the structure's cladding which has a tubular form. Because the geometrical, chemical and mechanical nature of the contact interface is neither axially nor radially homogeneous, the ultrasonic system must allow the acquisition of 2D images of this interface by means of controlled displacements of the sample rod along both its axis and its circumference. The final objective of the designed acoustic microscope is to be introduced in hot cells.

Title : High frequency acoustic microscopy imaging of the inner face of a PWR fuel rod cladding

Key words : *High-frequency acoustic microscopy, Ultrasound, High-Resolution imaging, Fuel rod, Pellet-Cladding interface, Non Destructive Testing.*

Liste des abréviations

APRP : Accident de Perte de Réfrigérant Primaire

CEA : Commissariat Energie Atomique et aux Energies Alternatives

CTM : Centrale de Technologie en Micro et nanoctronique

EDF : Electricité De France

HBS : High Burnup Structure

IES : Institut d'Electronique et des Systèmes

IPG : Interaction Pastille-Gaine

MEB : Microscopie Electronique à Balayage

LOCA : Loss Of Coolant Accident

RIA : Reactivity Initiated Accident

RMS : Root Mean Square

Zy-4 : Zircaloy-4

ZrO₂ : Dioxyde de zirconium

Table des matières

Table des figures	13
Liste des tableaux	17
1 Contexte et problématique industrielle	23
1.1 Introduction	24
1.2 Le contexte nucléaire	24
1.3 Fonctionnement d'un Réacteur à Eau Pressurisée (REP)	25
1.3.1 Principe de fonctionnement	25
1.3.2 Réaction de fission	26
1.4 Le cœur du réacteur nucléaire et le combustible	28
1.4.1 Le crayon combustible	28
1.5 Le comportement du crayon combustible sous irradiation	33
1.5.1 Sollicitations subies par la pastille et la gaine en fonctionnement normal	33
1.6 Phénoménologie de l'interaction pastille-gaine	37
1.6.1 Problématique	37
1.6.2 Besoin industriel	42
1.7 Conclusion	43
2 Microscopie acoustique haute fréquence dédiée à l'imagerie haute résolution en profondeur	45
2.1 Introduction	46
2.2 Généralités sur la microscopie acoustique	46
2.3 Microscope acoustique : principe de fonctionnement	48
2.3.1 Caractéristiques d'une onde ultrasonore	48
2.3.2 Principe de fonctionnement du microscope acoustique	49
2.4 Microscope acoustique : transduction et résolution	51
2.4.1 Transducteur acoustique	51
2.4.2 Ligne à retard	51
2.4.3 Lentille acoustique	51
2.4.4 Le liquide de couplage	52
2.4.5 Résolution	52
2.5 Etude de la résolution du capteur acoustique	54
2.5.1 Principe de la photolithographie	55
2.5.2 Conclusion	63
3 Microscopie acoustique haute fréquence sur cylindre	65

3.1	Introduction	66
3.1.1	Partie Mécanique	66
3.1.2	Partie électronique	66
3.1.3	Imagerie acoustique	66
3.1.4	Acquisition - Visualisation de l'image	68
3.2	Résultats obtenus par le prototype ultrasonore	73
3.2.1	Premières acquisitions ultrasonores	73
3.2.2	Imagerie par le prototype ultrasonore sur gaines	77
3.3	Conclusion	79
4	Simulation expérimentale et imagerie ultrasonore des 4 catégories de la face interne des tubes de gainage	81
4.1	Introduction	82
4.2	Imagerie ultrasonore sur tubes de gainage	82
4.3	Simulation expérimentale des catégories I et II : imagerie de gaines oxydées en externe et en interne	84
4.3.1	Oxydation de faible épaisseur	84
4.3.2	Oxydation forte épaisseur	86
4.4	Simulation expérimentale des catégories III et IV : imagerie de gaine avec un contact	88
4.4.1	Réalisation d'un démonstrateur simulant les états de la face interne de la gaine	88
4.4.2	Imagerie acoustique du démonstrateur avec un contact	90
4.4.3	Visualisation des images ultrasonores avec une échelle fixe et normalisée	91
4.5	Imagerie acoustiques des gaines avec un contact à la face interne après normalisation	92
4.6	Représentation des résultats sous forme d'histogrammes	96
4.7	Modélisation du système multicouche	99
4.8	Représentativité des échantillons	102
4.8.1	Premières images de la face interne des échantillons fabriqués	103
4.9	Conclusion	104
	Conclusions et perspectives	107
	Bibliographie	113

Table des figures

1.1	Centrale nucléaire. [Source : www.edf.fr]	24
1.2	Schématisation du fonctionnement d'un REP. [Source : http://www.cea.fr/]	25
1.3	Schéma de principe de la fission de l' U^{235} et du Pu^{239} [1].	26
1.4	(a) Schéma du coeur d'un réacteur nucléaire [2]; (b) Les 3 barrières d'étanchéité des centrales nucléaires [3].	27
1.5	(a) Schéma d'un assemblage combustible REP 17×17 et d'une grappe de contrôle; (b) Photo d'une portion d'assemblage REP, lors de l'étape de contrôle [4].	29
1.6	(a) Photo [5] et (b) schéma d'une grille d'assemblage [4].	29
1.7	Schéma montrant le jeu existant entre la pastille et la gaine.	30
1.8	Schéma d'un crayon combustible utilisé dans les REP (900 MW) [4].	31
1.9	(a) Séquence de fabrication du tube de gainage [5]; (b) Fabrication des gaines en alliage de zirconium : Laminage à pas de pélerin [5].	32
1.10	Cycle du combustible [5].	32
1.11	(a) Photo et (b) illustration des dimensions caractéristiques d'une pastille combustible utilisée dans un REP.	33
1.12	(a) Coup transversale montrant le comportement générale d'un crayon REP [6] (La gaine est en bleu); (b) Mise en diablo d'une pastille de combustible.	34
1.13	Réseau de fissures dans la pastille combustible après irradiation. (a) coupe transversale perpendiculaire à l'axe de symétrie [7]; (b) coupe longitudinale le long de l'axe de symétrie [8].	35
1.14	Illustration de l'effet bambou sur la gaine. (a) Représentation schématique des plis primaires et de la déformation en bambou de la gaine [9]; (b) Exemple de profilométrie axiale du diamètre d'un segment de crayon combustible après 2 cycles annuels [10] et [11].	38
1.15	Coupe longitudinale montrant l'évolution chronologique du crayon, (a) état initial, (b) fracturation et mise en "diablo" et (c) comblement du jeu pastille-gaine d'après [12].	39
1.16	Coupe radiale d'un crayon $UO_2/Zy-4$ irradié.	40
1.17	Micrographies optiques de l'interface combustible-gaine d'un crayon combustible (zone supérieure : gainage métallique, zone inférieure : combustible restructuré, zone intermédiaire : zircone interne).	40
1.18	Etat de l'interface pastille-gaine.	41
2.1	Schéma des capteurs acoustiques en transmission.	46
2.2	Configuration schématique du microscope acoustique à balayage dans le cas d'un échantillon plan. (a) Schéma fonctionnel; (b) Photographie.	48
2.3	Schéma du capteur et des trajets acoustiques en mode réflexion.	50

2.4	Changement d'indice acoustique.	50
2.5	Simulation du rayonnement acoustique d'un transducteur focalisé à la surface d'une gaine ayant une fréquence centrale de 150 MHz [13].	51
2.6	Schéma montrant l'ouverture du transducteur acoustique.	53
2.7	Faisceau acoustique focalisé à (a) la surface (b) en profondeur de l'échantillon à investiguer.	54
2.8	Représentation de l'imagerie du masque de silicium.	55
2.9	Images (a) acoustique et (b) optique d'un masque de silicium dont chaque plot est de dimension $30 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$	55
2.10	(a) étapes du dépôt de la résine sur le substrat ; (b) étalement de la résine par tournette ; (c) épaisseur obtenue de résine photosensible en fonction de la vitesse de rotation pour deux résines différentes.	56
2.11	Représentation d'une gaine de combustible.	56
2.12	Coefficients de réflexion d'ondes planes au niveau des différentes interfaces du crayon combustible et de l'échantillon de référence.	57
2.13	Représentation a) du dépôt de la résine et b) de la résolution du trait de lettrage.	58
2.14	(a) Imagerie de l'échantillon de référence ; (b) Image optique du motif 'IES' en résine pour un trait de lettrage de $60 \mu\text{m}$	58
2.15	Images acoustiques du motif 'IES' en résine pour de $7 \mu\text{m}$ d'épaisseur et de largeur de trait de (a) $60 \mu\text{m}$, (b) $50 \mu\text{m}$, (c) $40 \mu\text{m}$ et (d) $30 \mu\text{m}$	58
2.16	Images ultrasonore en profondeur du motif "IES" pour une résolution latérale de (a) $60 \mu\text{m}$, (b) $40 \mu\text{m}$	59
2.17	Profil de niveau de gris de la face interne de l'échantillon possédant le motif "IES" en (a) L1, (b) L2.	59
2.18	Images acoustiques du motif 'IES' en résine de $3 \mu\text{m}$ d'épaisseur et de largeur de trait de (e) $20 \mu\text{m}$, (f) $15 \mu\text{m}$, (g) $10 \mu\text{m}$ et (h) $5 \mu\text{m}$	60
2.19	Dépôt de la résine sur un substrat en verre pour une épaisseur de (a) $2.8 \mu\text{m}$ (b) $5.8 \mu\text{m}$ et (c) $10 \mu\text{m}$	61
2.20	Image optique du motif utilisé pour le dépôt de la résine.	61
2.21	Images ultrasonores des échantillons fabriqués pour la détermination de l'épaisseur seuil.	62
2.22	Valeurs de niveaux de gris correspondantes à chaque épaisseur de résine.	62
3.1	Schéma bloc du microscope acoustique haute fréquence [14].	67
3.2	Imagerie de surface (a). Imagerie en profondeur (b).	68
3.3	Représentation des axes X, Y, Z et Θ	69
3.4	Représentation de l'affichage d'une image relativement à l'acquisition de données circumférentielles.	69
3.5	Représentation d'une ligne d'acquisition complète (a). En bas, le signal redressé et filtré correspondant à cette acquisition (b).	70
3.6	Image ultrasonore d'un tube en Zy-4 en surface (a) et en profondeur (b) utilisée comme exemple dans cette partie.	71
3.7	Représentation d'un signal réfléchi au niveau des différentes interfaces présentes dans un échantillon d'une épaisseur d	71
3.8	Image ultrasonore montrant la variation de contraste en fonction des objets visualisés sur l'interface.	72

3.9	Profil de niveau de gris d'une interface qui comporte deux matériaux différents suivant une ligne L de l'image ultrasonore.	72
3.10	Image d'une gaine vierge en Zircaloy-4.	73
3.11	Signal acquis par le capteur. (a) Echo de la face externe; (b) Echo de l'interface d'une gaine Zircaloy-4 vierge.	74
3.12	Acquisition d'échos sur (a) une génératrice, (b) une rotation complète.	74
3.13	Représentation polaire du signal acquis par le transducteur ultrasonore.	75
3.14	Erreur sur la focalisation du capteur ultrasonore.	76
3.15	Amplitude de l'écho de la face interne de la gaine suivant la variation du point focal du capteur sur une distance de 270 μm	76
3.16	Image de (a) la face externe et (b) la face interne d'une gaine vierge acquise par le prototype ultrasonore optimisé.	77
3.17	Images de la face interne de la gaine contenant un mélange de colle et de billes de 60 $\pm 15\mu\text{m}$	78
3.18	Amplitude de l'écho au niveau de l'interface métal/air et métal/colle.	78
3.19	Coefficients de réflexion des interfaces dans 4 cas différents.	79
4.1	Etat de l'interface pastille-gaine.	82
4.2	Image (a) optique et acoustiques de la face externe (b) et interne (c) d'une gaine en Zy-4 avec 10 μm de zircon externe. La gaine est de type <i>G</i> du tableau 4.1 représentant la catégorie I.	84
4.3	Image (a) optique et acoustiques de la face externe (b) et interne (c) d'une gaine en Zy-4 avec 10 μm de zircon externe et interne. La gaine est de type <i>H</i> du tableau 4.1 représentant la catégorie I.	85
4.4	Image (a) optique et acoustiques de la face externe ((b) et (d)) et interne ((c) et (e)) d'une gaine Zy4 avec une couche de zircon externe et interne entre 6 et 32 μm ((b) et (c)), et entre 10 et 73 μm ((a), (d) et (e)).	86
4.5	Image (a) optique et acoustiques de la face externe ((b) et (d)) et interne ((c) et (e)) d'une gaine Zy4 avec une couche de zircon externe et interne entre 6 et 32 μm ((b) et (c)), et entre 10 et 73 μm ((a), (d) et (e)).	87
4.6	Image de la face interne d'une gaine Zy-4 avec une couche de zircon externe et interne (10-73 μm) (A droite). Les échos réfléchis au niveau de la face interne de la gaine en présence d'une couche de zircon externe et interne d'une épaisseur de (a) 10 μm ; (b) 30 μm ; (c) 50 μm (A gauche).	87
4.7	Essais de réalisation du contact au niveau de la face interne de la gaine.	89
4.8	Coefficients de réflexion pour les cas de contact Zy-4/ UO_2 et Zy-4/Colle.	89
4.9	Images acoustiques avec une couche de colle sur la face interne (a) d'une gaine en Zy-4 de type <i>B</i> , (b) d'une gaine M5 de type <i>C</i>	90
4.10	Schéma représentant les échos réfléchis au niveau des faces externe et interne de la gaine quand la focale est en profondeur.	92
4.11	Images acoustiques après normalisation et représentation avec la même échelle de visualisation avec une couche de colle sur la face interne (a) d'une gaine en Zy-4 de type <i>B</i> , (b) d'une gaine M5 de type <i>C</i>	93
4.12	Coefficients de réflexion pour les cas de contact (a) Zy-4/Air et Zy-4/Colle; (b) M5/Air et M5/Colle.	93

4.13	Images acoustiques après normalisation et représentation avec la même échelle de visualisation avec une couche de colle sur la face interne d'une gaine Zy-4 (a) de type <i>D</i> avec une couche de 10 μm de zircon externe (b) de type <i>K</i> avec une couche externe et interne de 10 μm de zircon.	94
4.14	Visualisations des catégories de la face interne de la gaine (a) I sur une gaine de type <i>D</i> (b) II, III ou IV sur une gaine de type <i>K</i> .	94
4.15	Images acoustiques avec une couche de colle sur la face interne d'une gaine Zy-4 avec une couche externe et interne de type (a) <i>F'</i> avec 30 μm de zircon, (b) <i>F</i> avec 66 μm de zircon.	95
4.16	Histogrammes représentant la dispersion des valeurs en volts des données acquises en focalisant au niveau de la face interne des gaines de type <i>B</i> et <i>C</i> .	96
4.17	Histogramme représentant la dispersion des valeurs de volts des données acquises au niveau de la face interne des gaines de type <i>G</i> , <i>H</i> et <i>K</i> .	97
4.18	Interfaces à l'intérieur de la gaine en fonction de la forme de l'histogramme.	98
4.19	Représentation du signal expérimental (en rouge) et simulé (en bleu) quand le transducteur acoustique est focalisé en surface d'une gaine de type <i>A</i> .	99
4.20	Représentation du signal expérimental (en rouge) et simulé (en bleu) quand le transducteur acoustique est focalisé en interface de la gaine de type <i>A</i> .	100
4.21	A-Scan quand le transducteur acoustique est focalisé en interface d'une gaine de type <i>G</i> .	100
4.22	A-Scan quand le transducteur acoustique est focalisé en interface d'une gaine de type <i>H</i> .	100
4.23	Représentation du signal expérimental (en rouge) et simulé (en bleu) quand le transducteur acoustique est focalisé en interface : Pz27/Silice/Zircon/Zircaloy-4/Zircon/Air pour une couche de zircon de 40 μm et une densité de 5680 Kg.m^3 .	101
4.24	Représentation du signal expérimental (en rouge) et simulé (en bleu) quand le transducteur acoustique est focalisé en interface d'une gaine de type <i>H</i> avec une couche de zircon externe et interne de 40 μm et une densité de 3000 Kg.m^3 .	101
4.25	Caractéristiques comparées de dilatation thermique de différents matériaux avec celles des céramiques polycristallines.	102
4.26	Formes des pastilles en Zerodur chargées dans l'échantillon représentatif.	103
4.27	Formes des pastilles en Zerodur chargées dans l'échantillon représentatif.	104
4.28	Représentation d'une gaine en Zy-4 comportant 12 pastilles en Zerodur avec différentes formes.	105
4.29	Imagerie ultrasonore sur 11 pastilles suivant la longueur d'une éprouvette représentative.	106

Liste des tableaux

1.1	Composition chimique du Zircaloy-4 (% massique)	30
1.2	Caractéristiques dimensionnelles d'une gaine en Zircaloy-4	31
2.1	Impédances acoustiques	57
3.1	Dimensions d'une gaine calibrée par EDF	76
4.1	Type de gaines utilisées en fonction des couches de zircon et de la nature de l'interface à l'intérieur de la gaine	83
4.2	Impédances acoustiques des matériaux	89

Introduction générale

La puissance des Réacteurs à Eau sous Pression (REP) est fournie par des pastilles d'oxyde d'uranium (UO_2 ou $(\text{U-Pu})\text{O}_2$) ou de combustible galodinié empilées dans des tubes métalliques, l'ensemble constituant un crayon combustible. Dès la première montée en puissance, le combustible subit de fortes contraintes thermiques et le centre de la pastille (à plus de 1000°C) se dilate beaucoup plus que sa périphérie (450°C). Ce gradient de température conduit à des contraintes axiales et orthoradiales qui dépassent très rapidement la contrainte de rupture de la pastille, ce qui induit une fragmentation de celle-ci radialement et axialement. De plus, dès la première montée en puissance, ce gradient de température induit une mise en diabolisme de la pastille. Par la suite et au cours de l'irradiation la pastille subit plusieurs types de déformations dont un gonflement dit "solide" induit par les produits de fission insérés dans le réseau cristallin et un gonflement gazeux induit par la nucléation des produits de fission gazeux sous forme de bulles. Parallèlement, la gaine, qui a un comportement élasto-viscoplastique, flue vers le combustible sous le différentiel de pression (pression externe = 155 bar et pression interne du crayon $\approx 40\text{-}50$ bar à chaud en début de vie). Après un certain temps d'irradiation (fin du 2ème, début du 3ème cycle d'irradiation¹), la pastille combustible et la gaine entrent en contact. Au delà du 3ème cycle d'irradiation, ce contact peut conduire à la formation d'îlots de zircone interne puis d'une couche de collage chimique (couche de zircone dense d'environ 10 à 15 microns) entre la pastille et la gaine. Après irradiation et au retour à froid, une partie du combustible reste adhérent à la gaine via cette couche de collage chimique.

Après irradiation, les crayons peuvent être transportés dans une Installation Nucléaire de Base pour être examinés dans des cellules dites « cellules chaudes ». À l'heure actuelle, seuls des examens à caractère destructif permettent la caractérisation de l'interface entre la pastille et la gaine. Or, l'utilisation d'une méthode de visualisation non destructive de cette interface tout le long d'un crayon présenterait plusieurs intérêts : d'une part cet examen permettrait de valider les modélisations du comportement thermo-mécanique du crayon en fonctionnement normal, d'autre part, il permettrait de connaître l'état de contact d'un crayon irradié avant sa réirradiation en réacteur expérimental, et mieux comprendre son comportement durant l'essai. Ce dernier point concerne des tronçons de crayons subissant des transitoires en conditions incidentelles (exemples : rampes de puissance classe²

1. Un cycle correspond au temps entre deux arrêts du réacteur pour rechargement du coeur et maintenance, soit environ 12 à 18 mois suivant les modes de gestion. Un cycle comprend donc une montée de puissance (démarrage du réacteur), un maintien de puissance plus ou moins constant (fonctionnement du réacteur) et un retour à froid (arrêt du réacteur) [15].

2. Les conditions de fonctionnement d'un réacteur se répartissent en 4 classes : Classe 1 (Fonctionnement normal), Classe 2 (Incidents de fréquence modérée), Classe 3 (Incidents de fréquence faible) et Classe 4 (Accidents importants) [4].

1 ou 2) ou accidentelles (exemples : essais semi-intégraux LOCA³ ou RIA⁴). Ainsi une collaboration a été lancée entre le CEA et l'IES avec le soutien d'EDF et FRAMATOME afin de pouvoir caractériser de manière non destructive l'interface pastille-gaine. C'est dans ce contexte que s'est déroulé le travail de thèse. L'objectif est de développer et qualifier, sur un banc prototype, une méthode non destructive d'imagerie de la face interne de gaine, basée sur le principe du microscope acoustique, habituellement mis en oeuvre sur des géométries planes. Les contrastes des images obtenues sont liés aux propriétés mécaniques de la surface interne, et permettent de détecter les changements de structure dus à la présence de zircone interne ou de combustible adhérent. Le travail de thèse est axé essentiellement sur la conception et la validation d'un démonstrateur de la faisabilité et de l'intérêt de la méthode pour une meilleure connaissance de l'interface pastille-gaine, en prenant en compte l'évolution complexe de la gaine en cours d'irradiation, y compris sur sa face externe, qui est la première interface rencontrée par le faisceau ultrasonore. Les études menées sont effectuées en laboratoire sur échantillons non irradiés, tout en anticipant la réalisation ultérieure de mesures en cellules chaudes.

Le manuscrit est organisé de la manière suivante :

- Le premier chapitre présente le contexte de l'étude. Il donne notamment une synthèse bibliographique sur l'aspect nucléaire de l'étude et le comportement du crayon combustible sous irradiation. Ensuite, les principaux phénomènes qui rentrent en jeu dans l'interaction pastille-gaine sont exposés. Ce chapitre se termine par le positionnement de la thèse : problématiques et objectifs.
- Le deuxième chapitre est dédié à la présentation de la méthode ultrasonore développée pour atteindre de manière non destructive la connaissance des états de l'interface pastille-gaine. Une étude visant à caractériser la résolution latérale et axiale du capteur ultrasonore dans une configuration plane est réalisée permettant ainsi de passer dans le prochain chapitre à des mesures acoustiques dans une configuration cylindrique.
- Le troisième chapitre décrit le microscope acoustique ultrasonore haute fréquence dédié à l'imagerie de cylindres et les premiers résultats obtenus. Ensuite, les différentes études et optimisations mécaniques réalisées sont données, elles permettent d'établir les limites liées aux variations de la géométrie cylindrique et de la surface de la gaine. Cela permet de progresser dans l'interprétation des images acoustiques.
- Le dernier chapitre présente les résultats obtenus sur échantillons simulants. Par la suite, un protocole permettant de comparer en absolu les différentes images obtenues est détaillé. Afin de pouvoir différencier des signaux acoustiques avec/sans la couche

3. LOCA (Loss Of Coolant Accident) : Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP), il résulte de la rupture avec débatement d'une canalisation principale du circuit primaire. Cette rupture entraîne la dépressurisation de ce circuit, conduisant à une vaporisation de l'eau. Malgré l'arrêt des réactions de fission, le combustible continue de chauffer, il est alors impératif d'évacuer cette énergie par la mise en oeuvre immédiate du système d'injection d'eau de secours [16].

4. RIA (Reactivity Initiated Accident) : Accident d'injection de réactivité, cet accident est causé par l'éjection d'une grappe de commande du réacteur, ce qui induit localement une accélération de la réaction de fission nucléaire, avec augmentation de la température, et peut conduire à la rupture du crayon combustible [17].

de zircone interne et avec/sans une couche de combustible adhérente, un logiciel de modélisation est utilisé pour aller plus loin dans l'étude des échos réfléchis au niveau des interfaces traversées.

Enfin, ce manuscrit est finalisé par une conclusion sur les travaux réalisés et les perspectives répondant à de nouvelles problématiques soulevées dans cette étude.

I

Contexte et problématique industrielle

Sommaire

1.1	Introduction	24
1.2	Le contexte nucléaire	24
1.3	Fonctionnement d'un Réacteur à Eau Pressurisée (REP)	25
1.3.1	Principe de fonctionnement	25
1.3.2	Réaction de fission	26
1.4	Le cœur du réacteur nucléaire et le combustible	28
1.4.1	Le crayon combustible	28
1.5	Le comportement du crayon combustible sous irradiation	33
1.5.1	Sollicitations subies par la pastille et la gaine en fonctionnement normal	33
1.6	Phénoménologie de l'interaction pastille-gaine	37
1.6.1	Problématique	37
1.6.2	Besoin industriel	42
1.7	Conclusion	43

1.1 Introduction

Dans ce chapitre d'introduction, nous présentons le contexte industriel dans lequel se déroulent les travaux de cette thèse et plus particulièrement l'Interaction Pastille-Gaine en fonctionnement normal en définissant quelques notions générales sur les réacteurs nucléaires et notamment sur les réacteurs civils de la filière REP (Réacteurs à Eau Pressurisée) intégrant les crayons combustibles objets de cette étude.

1.2 Le contexte nucléaire

En France, les centrales nucléaires regroupent un total de 58 réacteurs dont 34 produisent chacun une puissance électrique de 900 MégaWatt (MWe)¹ permettant d'alimenter près de 500 000 foyers. A cela s'ajoutent 20 réacteurs de 1300 MWe, tandis que les quatre derniers délivrent 1450 MWe. Un 59^{ème} réacteur de type EPR (Evolutionary Pressurised water Reactor) est destiné à développer une puissance électrique de l'ordre de 1600 MWe. Selon le RTE (Réseau de Transport d'Electricité), ces installations produisent en moyenne sur cinq années 75% de l'électricité produite en France.

Une centrale thermique nucléaire produit de l'électricité à partir d'une source de chaleur. Elle comprend de nombreux bâtiments et installations (Figure 1.1) dont les suivants sont les plus importants :

- Le bâtiment réacteur, généralement une double enceinte étanche contenant le réacteur nucléaire où se déroule la réaction nucléaire qui réchauffe l'eau.
- Le bâtiment des machines (plusieurs turbines à vapeur et alternateurs qui servent à la production de l'électricité).
- Souvent l'aéroréfrigérant ayant comme fonction de refroidir l'eau du circuit tertiaire.



Figure 1.1 – Centrale nucléaire. [Source : www.edf.fr]

Même si le principe de fonctionnement est identique dans toutes les centrales nucléaires, il existe plusieurs familles de réacteurs, appelées filières. Dans ce qui suit, la filière la plus

1. Le mégawatt électrique (MWe) correspond à la production de puissance électrique par une centrale. Cette unité est couramment utilisée dans le milieu nucléaire pour distinguer la production électrique de la dissipation thermique d'une centrale (la puissance thermique s'exprimera en mégawatt thermique (MWt ou MWth)).

répandue au monde de type REP (Réacteur à Eau Pressurisée)² et qui produit presque la moitié de l'électricité mondiale d'origine nucléaire sera étudiée.

1.3 Fonctionnement d'un Réacteur à Eau Pressurisée (REP)

1.3.1 Principe de fonctionnement

Le principe de fonctionnement d'un REP (Figure 1.2) se base sur le phénomène de vaporisation de l'eau sous l'effet de la très haute température régnant au sein du coeur du réacteur pour faire actionner le groupe turbo-alternateur générant de l'électricité. Le cycle est complété par un système de refroidissement dit circuit tertiaire qui va faire condenser la vapeur d'eau sous forme liquide. En général, ce rôle de réfrigérant est tenu par un courant d'eau.

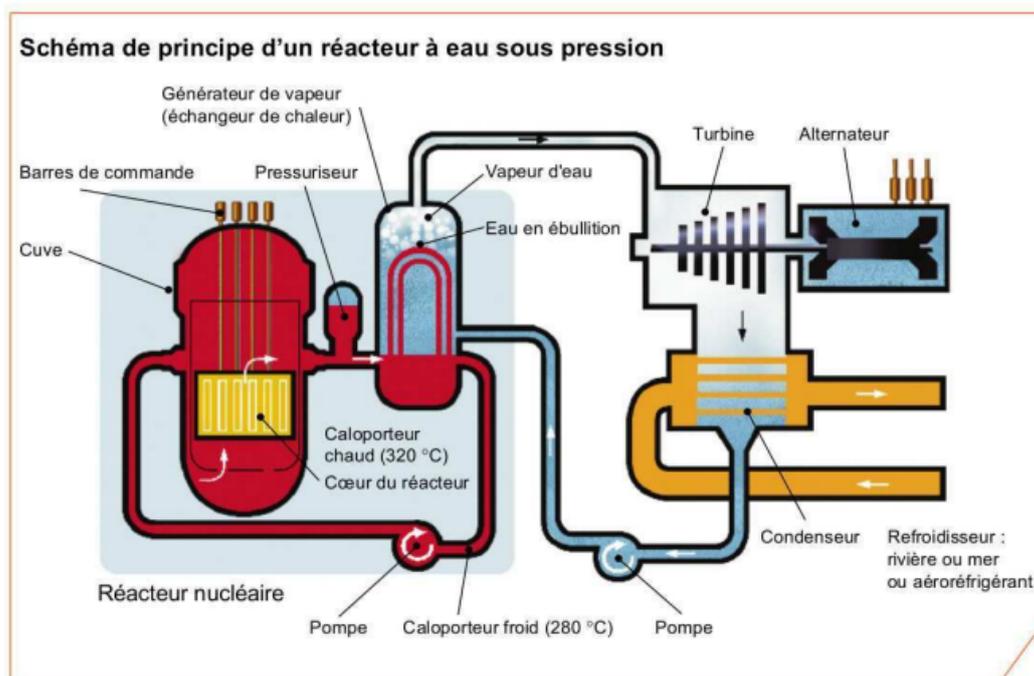


Figure 1.2 – Schématisation du fonctionnement d'un REP. [Source : <http://www.cea.fr/>]

Comme l'indique son nom, le "Réacteur" est l'endroit où se produit la réaction de fission nucléaire. Il s'agit le plus souvent d'une grande cuve métallique, et l'expression "à Eau Pressurisée" vient du fait que l'eau qui transporte la chaleur, dans le circuit primaire, est sous très forte pression : 155 bars. L'eau du circuit primaire circule dans le coeur du réacteur pour y être réchauffée au contact de tubes renfermant le combustible nucléaire où se produisent les fissions nucléaires. Ce circuit entre en contact avec le circuit secondaire au niveau des générateurs de vapeur. Au contact des tubes parcourus par l'eau chaude du circuit primaire, l'eau du circuit secondaire se transforme en vapeur. Cette vapeur ainsi produite entraîne un ensemble de turbines dont l'énergie mécanique est transformée en

2. Le sigle REP sera utilisé dans tout le reste du document pour désigner Réacteur à Eau Pressurisée.

énergie électrique au niveau de l'alternateur. La vapeur détendue passe ensuite dans le condensateur pour y être refroidie, condensée et renvoyée dans le générateur de vapeur. Le circuit tertiaire dont l'eau est prélevée dans la mer ou dans un fleuve permet de refroidir l'eau du circuit secondaire.

1.3.2 Réaction de fission

Chaque fission d'un noyau lourd se traduit par l'apparition de deux noyaux et l'émission d'un certain nombre de neutrons, électrons (rayonnements β) et photons (rayonnement γ) (Figure 1.3). L'énergie libérée par la réaction de fission (environ 200 MeV pour la fission d'un noyau d' U^{235} ou de Pu^{239} isotopes majoritairement fissiles en REP) se répartit sous forme d'énergie cinétique entre ces fragments et particules. Les particules les plus légères telles que les neutrons, sont émises à grande vitesse. Elles sont appelées neutrons rapides (énergie supérieure à 625 MeV). Ces neutrons une fois ralentis, par un modérateur, se mettent en équilibre thermique avec le milieu : connus sous le nom de neutrons thermalisés [1]. Ces derniers sont aptes à provoquer de nouvelles fissions, et ainsi entretenir la réaction en chaîne [18]. Il suffit seulement qu'un neutron, à chaque fission, pour que cela provoque une nouvelle fission et libère de l'énergie [19].

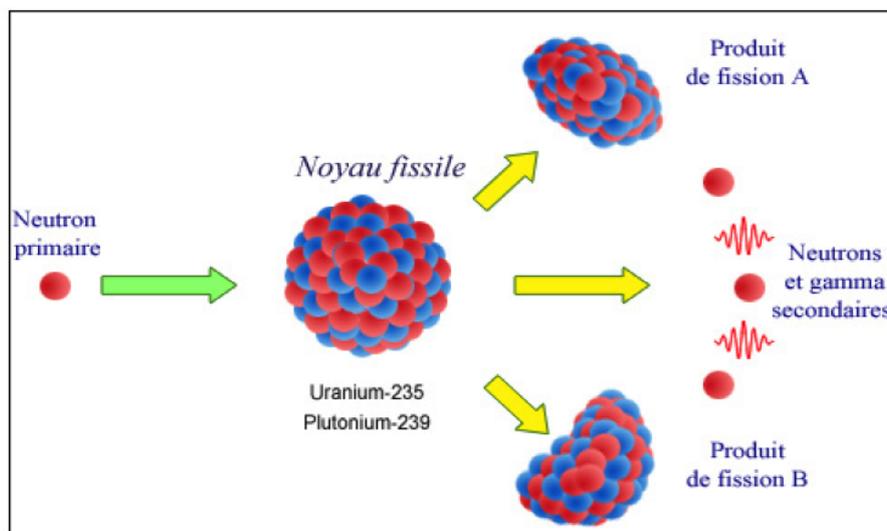


Figure 1.3 – Schéma de principe de la fission de l' U^{235} et du Pu^{239} [1].

Cette réaction de fission dégage une très grande quantité d'énergie, au sein du réseau cristallin du combustible, qui est transférée à l'eau du circuit primaire qui s'échauffe et fait ainsi fonctionner la centrale. Les travaux de cette étude vont concerner seulement le bâtiment réacteur qui assure le confinement du réacteur. Son enceinte constitue la troisième barrière de confinement empêchant le relâchement de produits radioactifs dans l'environnement en cas d'accident. C'est à l'intérieur de ce bâtiment que se trouve la cuve du réacteur et le circuit primaire qui représente la deuxième barrière de confinement (Figure 1.4 (a)). L'eau du circuit primaire joue deux rôles :

- Un rôle de modérateur qui permet de ralentir la vitesse des neutrons, ce qui est nécessaire pour déclencher la fission en REP.
- Un rôle de caloporteur qui permet de capter la chaleur du coeur (le refroidit) et la transporte jusqu'au générateur de vapeur. L'eau du circuit primaire est également

appelée réfrigérant. Le circuit primaire est un circuit fermé et l'eau de celui-ci est maintenue à une pression de 155 bars grâce à un pressuriseur pour éviter toute ébullition. L'eau entre dans le coeur à une température de 285°C pour en ressortir à une température de 320°C à destination des générateurs de vapeur.

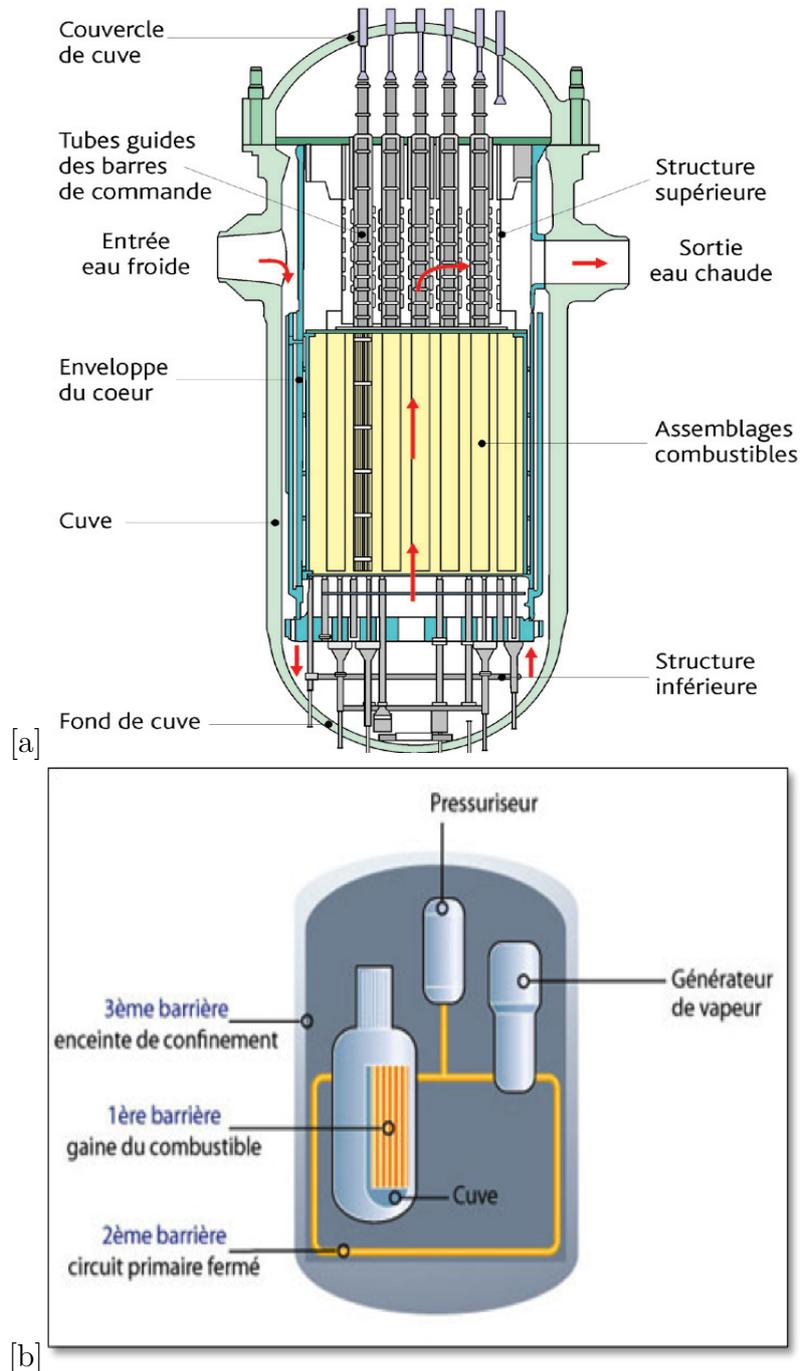


Figure 1.4 – (a) Schéma du coeur d'un réacteur nucléaire [2]; (b) Les 3 barrières d'étanchéité des centrales nucléaires [3].

Pour éviter le rejet dans l'environnement de substances radioactives, toutes les centrales de type REP sont conçues sur le principe dit : "Triple barrière de confinement" (Figure 1.4 (b)) :

- Le combustible est enfermé dans des gaines métalliques étanches : le crayon combustible.

- Le circuit primaire est contenu dans un circuit métallique étanche, constitué des parois de la cuve du réacteur, des générateurs de vapeurs, du pressuriseur et des tuyauteries : circuit primaire.
- Le réacteur est enfermé dans une enceinte en béton étanche qui le protège également en cas d'agression externe [20] : enceinte de confinement.

De plus, les circuits d'eau (circuits primaires, secondaires et tertiaires) sont indépendants pour éviter toute dispersion d'éléments radioactifs entre eux. De même, en cas de situations anormales, des barres de sécurité chutent automatiquement dans le coeur du réacteur stoppant instantanément les réactions de fission en chaîne [21].

1.4 Le coeur du réacteur nucléaire et le combustible

Assemblage combustible

Le coeur du réacteur est composé de crayons combustibles, constitués par le combustible nucléaire et sa gaine, et regroupés pour former un assemblage combustible dans lequel ils sont arrangés dans une structure carrée assurant leur maintien. Pour une puissance de 900 MWe le réacteur nucléaire comprend 157 assemblages et 191 assemblages dans les tranches 1300 MWe [5]. Un assemblage combustible (Figure 1.5) est constitué d'un squelette comprenant différents éléments soudés entre eux :

- l'embout supérieur servant notamment à la manipulation des assemblages ;
- les tubes-guide sur lesquels sont soudées les grilles ;
- l'embout inférieur sur lequel va reposer l'assemblage.

Ce squelette assure la tenue mécanique et la stabilité dimensionnelle de cette structure élancée (plus de quatre mètres de long). Il assure également la stabilité du canal hydraulique autour de chaque crayon et permet de garantir la qualité des échanges thermiques et l'évacuation de la chaleur. Les crayons combustibles sont mis en place avant l'adjonction des embouts inférieur et supérieur et sont au nombre de 264. Les tubes-guide servent à l'introduction des barres de contrôle qui gèrent la réactivité du coeur par capture de neutrons (modification de puissance ou arrêt total du réacteur). Les grilles de maintien (au nombre de 8 pour les réacteurs de 1300 MWe) sont serties sur les tubes guides par l'intermédiaire de manchons. Sur ces grilles, des bossettes sont présentes pour tenir le crayon. De petites languettes inclinées, appelées ailettes de mélange (Figure 1.6), garantissent une bonne homogénéisation du débit du fluide réfrigérant traversant le faisceau de crayons du bas vers le haut à une vitesse moyenne de 4,8 m/s. La plaque du pied de l'assemblage permet son maintien et son positionnement lors des opérations de chargement par encastrement sur des têtes aménagés sur la plaque inférieure du coeur. La plaque de tête est munie de ressorts qui s'opposent à la force ascensionnelle du réfrigérant en prenant appui sur la plaque supérieure du coeur [22].

1.4.1 Le crayon combustible

Le crayon combustible se compose d'un tube de gainage dans lequel sont empilées des pastilles de combustible maintenues grâce à un ressort. Le crayon est fermé à ses extrémités par deux bouchons en Inconel [22] (Figure 1.8). Initialement, le tube de gainage et les

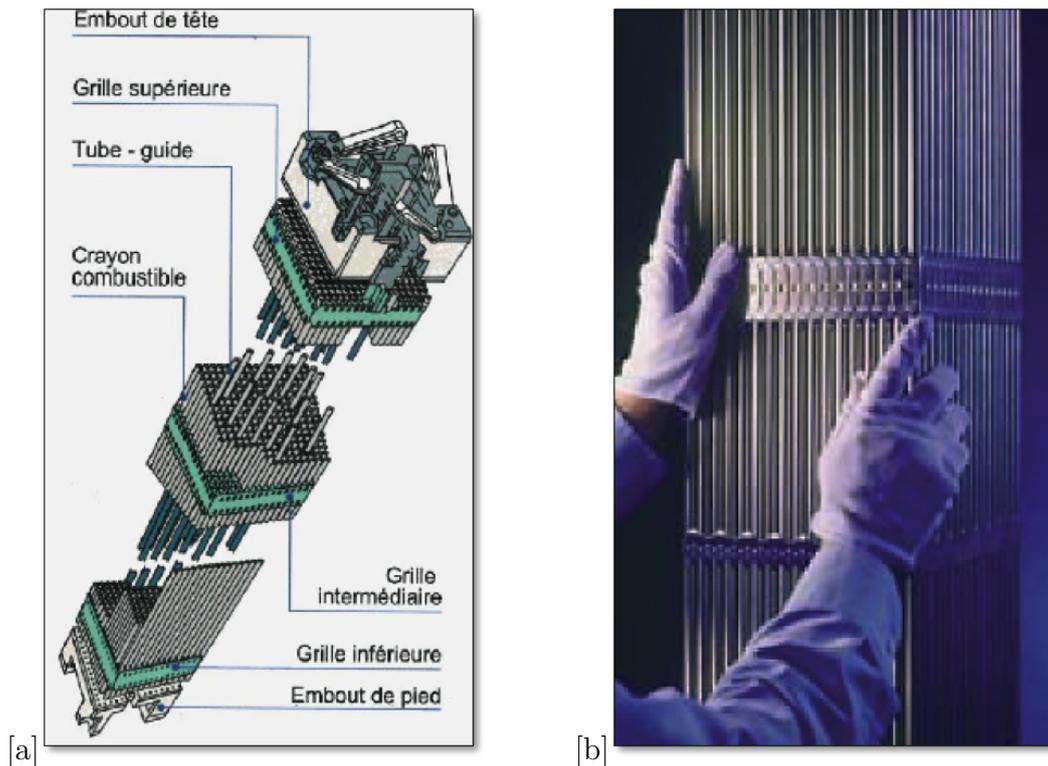


Figure 1.5 – (a) Schéma d'un assemblage combustible REP 17×17 et d'une grappe de contrôle ; (b) Photo d'une portion d'assemblage REP, lors de l'étape de contrôle [4].

pastilles ne sont pas en contact. L'espace qui les sépare est appelé : **Jeu pastille-gaine** (Figure 1.7). En effet, à la fabrication, l'intérieur du crayon combustible est généralement rempli d'hélium afin d'améliorer les échanges thermiques entre la pastille et la gaine [23] et de pressuriser suffisamment le crayon en regard de la pression qui règne dans le caloporteur.

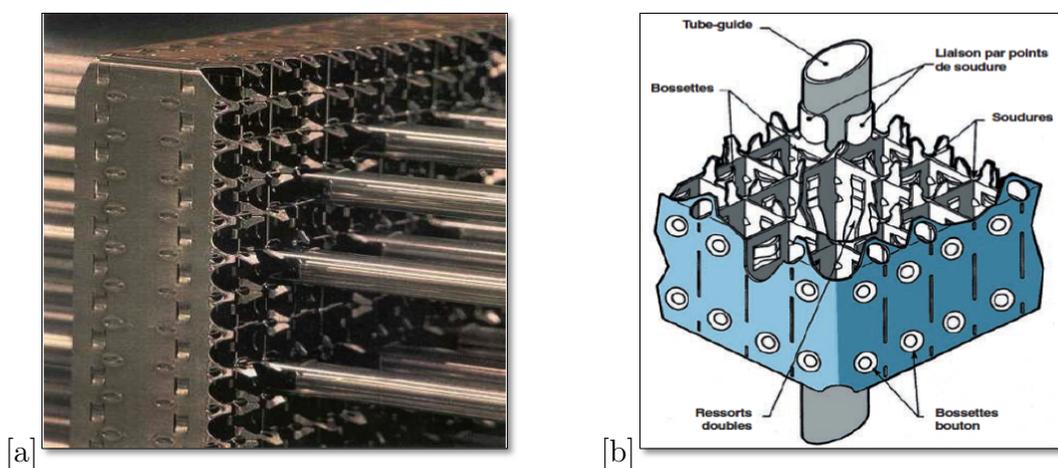


Figure 1.6 – (a) Photo [5] et (b) schéma d'une grille d'assemblage [4].

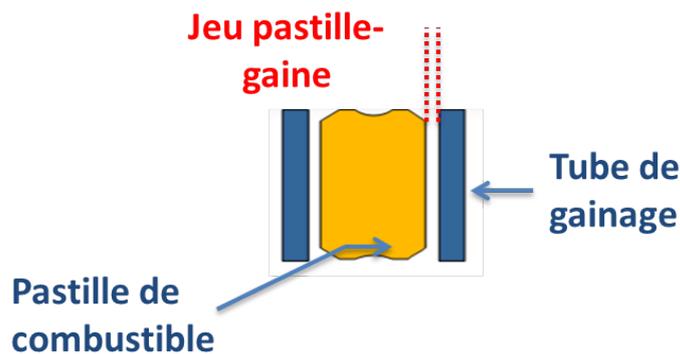


Figure 1.7 – Schéma montrant le jeu existant entre la pastille et la gaine.

Table 1.1 – Composition chimique du Zircaloy-4 (% massique)

ELEMENT	Sn	Fe	Cr	O	Zr
ZIRCALOY-4 (% en poids)	1.2 - 1.7	0.18 - 0.24	0.07 - 0.13	0.1 - 0.14	Zr complément à 100 %

La gaine

La gaine est un tube de 4 m de longueur et de $570 \mu\text{m}$ d'épaisseur qui constitue la première barrière de confinement des produits de fission générés par les réactions nucléaires dans le combustible.

Composition chimique de la gaine

Le gainage est élaboré à partir d'un lingot en alliage à base de zirconium, matériau choisi pour ses propriétés de transparence aux neutrons, ses propriétés mécaniques et sa résistance à la corrosion par le fluide caloporteur à haute température. Pour ce type de gainage, plusieurs alliages de zirconium sont actuellement utilisés en REP. Le Zircaloy-4 bas étain, le M5, le Zirlo et l'Optimized Zirlo sont actuellement utilisés en REP EDF. A titre d'exemple, la composition chimique du Zircaloy-4 est donnée dans le tableau 1.1 [5].

Fabrication de la gaine

Deux phases essentielles dans la fabrication des gaines en Zy-4 sont distinguées (Figure 1.9 (a)) :

- Le lingot est filé à chaud pour obtenir le TREX (Tube Reduced EXtrusion) ;
- Ce produit intermédiaire est ensuite laminé à froid (laminage à pas de pélerin (Figure 1.9 (b)) pour conduire au tube ayant les dimensions et tolérances souhaitées (tableau 1.2) ;

Ensuite le tube est soumis à un traitement thermique final dans un four à atmosphère contrôlée. La température et la durée du traitement ainsi que la vitesse de refroidissement sont fonction des caractéristiques mécaniques visées [5]. Suivant les conditions de traitement utilisées, les matériaux obtenus peuvent être détendus comme le cas du Zy-4 et

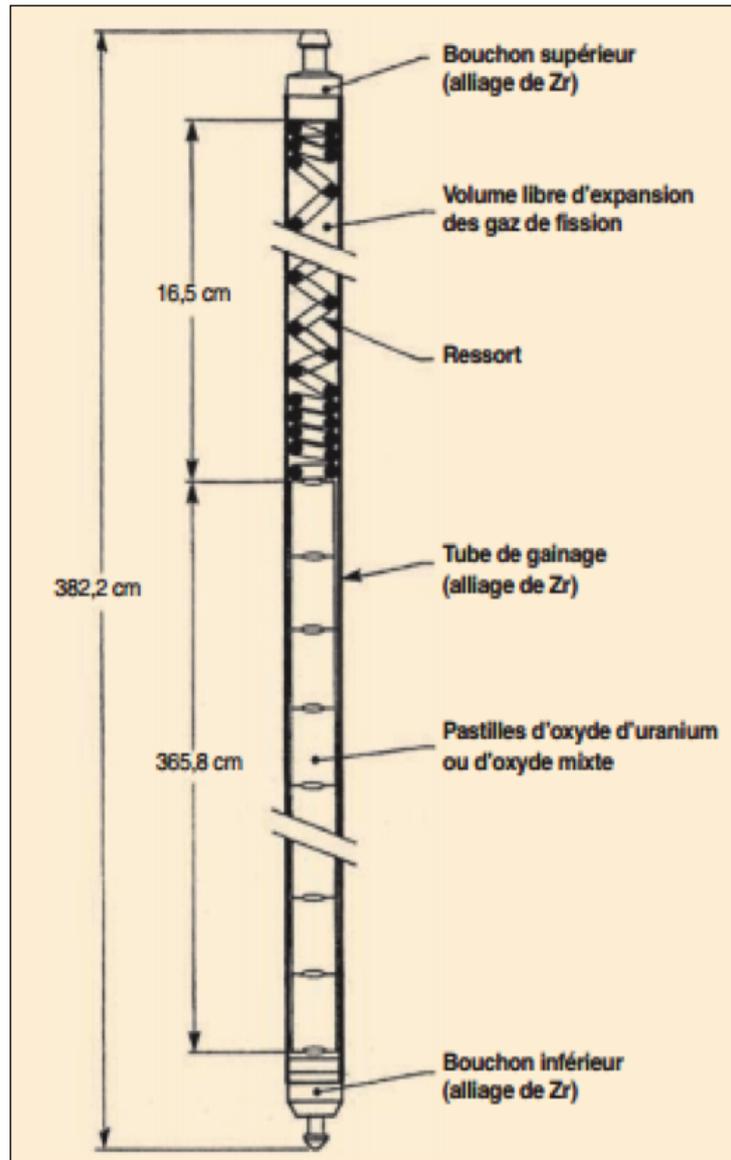


Figure 1.8 – Schéma d'un crayon combustible utilisé dans les REP (900 MW) [4].

du Zirlo, partiellement recristallisés comme le cas de l'Optimized ZIRLO ou recristallisés comme le cas du M5.

Table 1.2 – Caractéristiques dimensionnelles d'une gaine en Zircaloy-4

Gaine en Zircaloy-4 (Géométrie 17x17)	
Diamètre extérieur	9.50 ± 0.04 mm
Diamètre intérieur	8.36 ± 0.04 mm
Épaisseur moyenne	570 μ m
Excentricité maximum tolérée	51 μ m
Excentricité moyenne fabrication	10 μ m

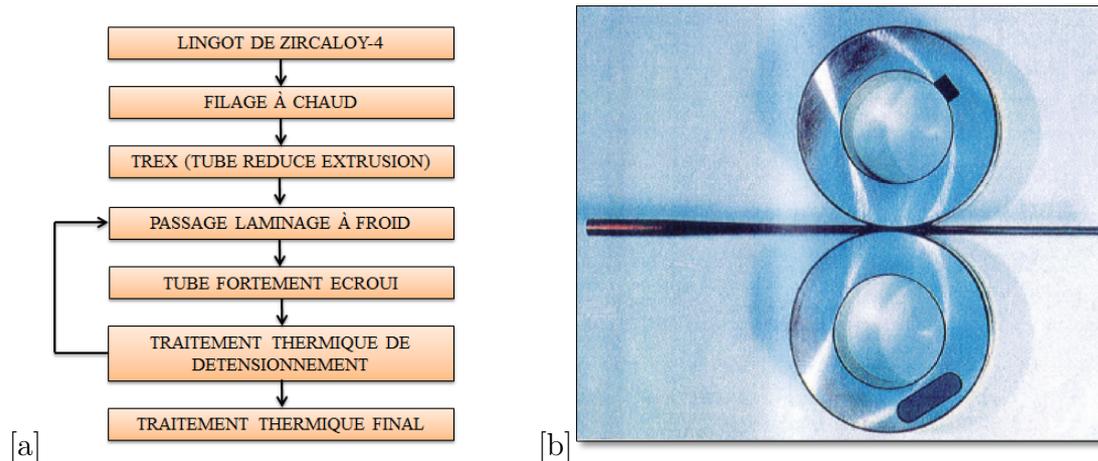


Figure 1.9 – (a) Séquence de fabrication du tube de gainage [5]; (b) Fabrication des gaines en alliage de zirconium : Laminage à pas de pélerin [5].

La pastille combustible

Dans les réacteurs à eau ordinaire, la matière fissile est sous forme d'oxyde polycristallin UO_2 ³ [25] (ou $(U-PU)O_2$ [26] dans le cas du combustible MOX) ou de combustible gadoliné⁴. Le combustible est conditionné sous forme de pastilles par pressage et frittage de la poudre du combustible. La figure 1.10 montre les différentes étapes du cycle de combustible partant de l'extraction du minerai pour aboutir au retraitement et au stockage des déchets. Le dioxyde d'uranium typique utilisé en REP se présente sous forme

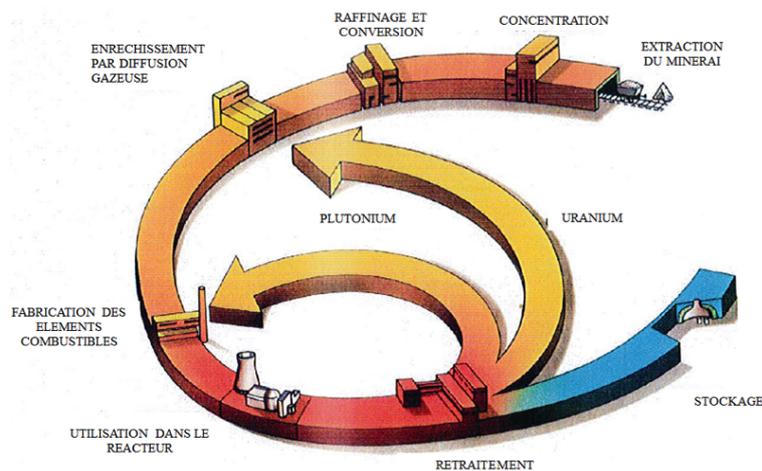


Figure 1.10 – Cycle du combustible [5].

de pastilles cylindrique de l'ordre de 8,2 mm de diamètre et d'une hauteur d'environ 13,5 mm (Figure 1.11 (a)). Ces pastilles sont empilées dans le crayon et possèdent à chaque extrémité un évidement hémisphérique et des chanfreins pour faciliter leur introduction dans la gaine et réduire les contraintes d'interaction pastille-gaine dans ces zones lors de

3. Il s'agit de $^{238}UO_2$ légèrement enrichi en noyaux fissiles $^{235}UO_2$ à hauteur de 4.5% [24].

4. Le gadolinium est introduit sous forme d'oxyde de gadolinium Gd_2O_3 , poudre qui est mélangée à celle d'oxyde d'uranium avant le compactage et le frittage des pastilles. Il est utilisé dans les REP exploités par EDF grâce à sa grande probabilité de capture de neutrons [27]. L'objectif du combustible gadoliné est de compenser l'excès initial de réactivité des assemblages neufs (dont la teneur en noyaux fissiles est élevée) en REP.

l'irradiation en réacteur et plus précisément en cas de transitoires incidentels (exemple : rampe de puissance class 2) ou accidentels (exemple : Reactivity Initiated Accident). Les plans inter-pastille et médian-pastille sont présentés dans la figure 1.11 (b) d'un point de vue géométrique. Dans un réacteur de 1300 MWe, 272 pastilles sont nécessaires pour

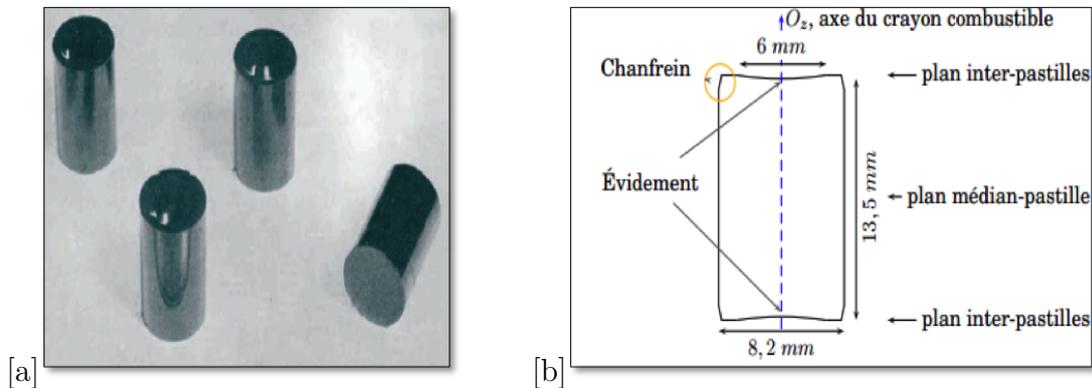


Figure 1.11 – (a) Photo et (b) illustration des dimensions caractéristiques d'une pastille combustible utilisée dans un REP.

constituer un crayon combustible. Le cœur du réacteur se compose de 193 assemblages de 264 crayons, soit un total de 104 tonnes d'UO₂ (1 gramme d'UO₂ produit autant d'énergie que 2 tonnes de pétrole) [22].

1.5 Le comportement du crayon combustible sous irradiation

La gaine du crayon combustible est conçue pour confiner la matière nucléaire combustible et les produits des réactions nucléaires pendant le séjour du combustible en réacteur. Le crayon combustible y séjourne quelques années avant d'avoir atteint les limites de fonctionnement. En effet, au cours de l'irradiation le combustible UO₂ et la gaine du crayon combustible évoluent et vieillissent. C'est pourquoi il y a un fort intérêt économique à comprendre le comportement du crayon combustible sous irradiation afin d'augmenter son temps de séjour au sein du réacteur en améliorant les performances du combustible et de la gaine vis à vis des critères de sûreté. Pour un exploitant de Réacteur à Eau Pressurisée, cela permettrait également d'optimiser le coût moyen de cycle [4].

1.5.1 Sollicitations subies par la pastille et la gaine en fonctionnement normal

En fonctionnement normal, les éléments du crayon combustible subissent de nombreux changements thermomécaniques et physico-chimiques liés aux fortes températures et aux réactions de fissions :

- grandissement, fluage, corrosion et hydruration de la gaine,
- fissions nucléaires, gonflement solide et gazeux dû aux produits de fission au sein de la pastille et relâchement des gaz de fission produit au sein de celle-ci dans les volumes libres du crayon. . .

Ces changements conduisent rapidement à un gradient radial et axial des propriétés qui évoluent tout au long de l'exploitation et qui a pour conséquence de modifier le comportement des matériaux. Le schéma de la figure 1.12 (a) décrit les principaux phénomènes qui se produisent dans un crayon REP durant son séjour en réacteur. Ci-après, seront

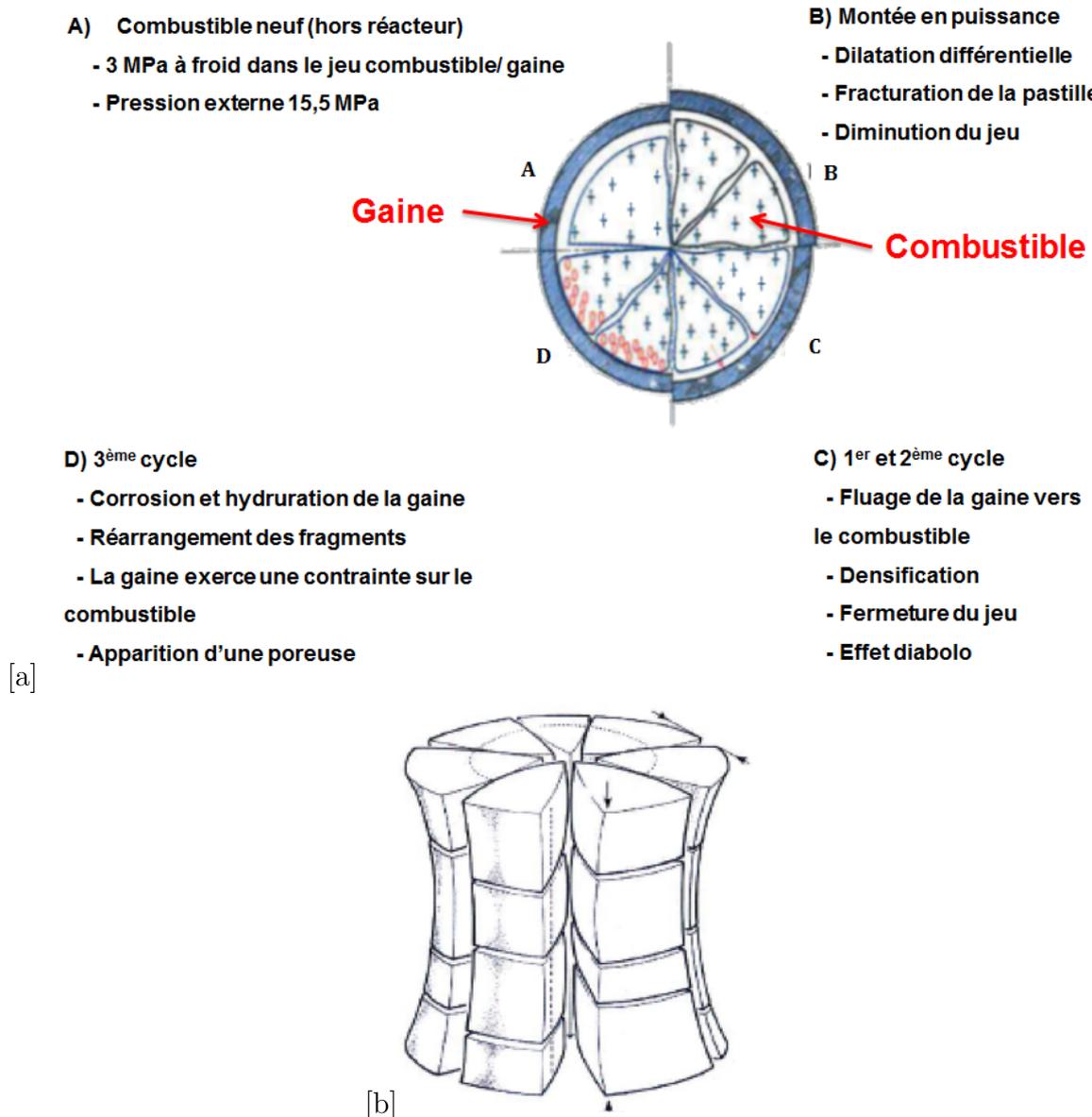


Figure 1.12 – (a) Coup transversale montrant le comportement générale d'un crayon REP [6] (La gaine est en bleu); (b) Mise en diabolos d'une pastille de combustible.

évoqués les phénomènes relatifs aux interactions qui se déroulent au niveau de l'interface pastille-gaine. La référence [6] présente une liste plus complète.

Effet Diabolos [5] et [22]

Au cours de l'irradiation, la pastille combustible ne reste pas parfaitement cylindrique et prend une forme de 'diabolos' (Figure 1.12) (b) pour les deux raisons suivantes :

- En fabrication, la température de frittage n'est pas uniforme. Les parties extérieures de la pastille frittent plus que l'intérieur. La perte de cylindricité est rattrapée à ce

stade par l'opération de rectification. Pendant l'irradiation, le phénomène inverse se produit et c'est alors le cœur de la pastille qui, étant plus chaud, fritte davantage conduisant ainsi à une dilatation différentielle et produisant l'effet 'diabolo'.

- L'amplitude de la dilatation thermique dans la direction axiale est plus importante sur la fibre centrale qu'en périphérie, amplifiant l'effet "diabolo" [28].

Fissuration

Comme mentionné ci-dessus, le centre de la pastille se dilate thermiquement plus que les bords créant une répartition inhomogène des contraintes thermiques. La partie extérieure de la pastille est rapidement mise en traction. Lorsque la contrainte à rupture de l' UO_2 est atteinte localement (environ 100 MPa), le combustible relâxe l'énergie en se fissurant plusieurs fois dans le sens azimutal et axial (Figure 1.13) [29].

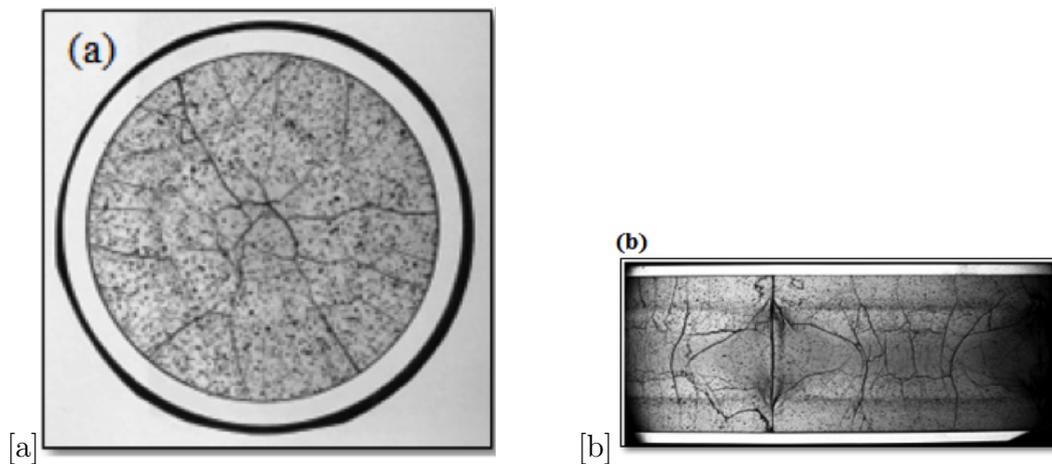


Figure 1.13 – Réseau de fissures dans la pastille combustible après irradiation. (a) coupe transversale perpendiculaire à l'axe de symétrie [7]; (b) coupe longitudinale le long de l'axe de symétrie [8].

Densification

Le procédé de fabrication par frittage utilisé pour la mise en forme des pastilles conduit à un combustible présentant de fines porosités de fabrication dont le spectre diamétral est compris entre le nano et la dizaine de micromètre. En réacteur, et uniquement en début de vie, la porosité nanométrique disparaît sous l'effet des pointes de fission nucléaire, induisant une augmentation de la densité de la pastille et un retrait isotrope de la pastille : c'est le phénomène de densification.

Gonflement

Parallèlement, tout au long de l'irradiation la réaction de fission libre, outre les neutrons, deux noyaux élémentaires avec un rendement variable suivant l'élément considéré. Environ 30% de ces produits de fission se trouvent sous forme gazeuse (exemples des produits de fissions gazeux produits majoritairement au sein du combustible UO_2 : le xénon 'Xe' et le krypton 'Kr') ou volatile (exemples de produits de fission volatils : le diiode ' I_2 '

et le césium). Les 70% restant sont sous forme solide et pseudo-solide dans les gammes de températures atteintes. Au final, même si la solution solide de la pastille voit son paramètre cristallin diminuer, le volume macroscopique du combustible augmente pendant l'irradiation car le nombre d'atomes augmente (une fission crée au minimum deux atomes). Ce phénomène de gonflement est dit « solide ». En réalité les produits de fission gazeux participent à ce gonflement et ce tant que ceux-ci n'ont pas nucléé sous forme de bulles. Il n'est donc pas correct d'attribuer ce gonflement uniquement aux produits de fission solides. Ce phénomène est actif dans toutes les zones radiales de la pastille. Parallèlement, à moyen et fort taux de combustion en REP EDF, plus précisément au centre de la pastille où la température est élevée ($T^{\circ}\text{C} > 850\text{-}900^{\circ}\text{C}$), les produits de fission gazeux (Rappel : xénon, krypton sont les produits de fission gazeux qui sont créés en majorité) dissous dans le réseau cristallin, se mettent à précipiter sous forme de bulles intra-granulaires. Dans le domaine de la physico-chimie, ces bulles sont appelées : bulles nanométriques. A fort taux de combustion, ces bulles, qui font quelques nanomètres à l'état initial et qui sont généralement sphériques, peuvent grossir sous flux de lacunes et former des bulles sphériques jusqu'à 200 nanomètres de diamètre. Ces bulles sont appelées : bulles de précipitations. La fraction volumique cumulée de ces bulles est d'environ 1.5 % pour un crayon irradié à fort taux de combustion en REP EDF. En fonctionnement normal, ces bulles ne peuvent pas bouger et sont des sites de piégeages pour les produits de fission gazeux (xénon et krypton). Sous l'effet du gradient thermique qui règne au sein de la pastille, les produits de fission gazeux, dissous dans le réseau cristallin ou ceux qui sont remis en solution depuis les bulles intra-granulaires par l'effet des pointes de fission nucléaires, peuvent diffuser jusqu'aux joints de grain. Ces gaz peuvent être à l'état dissous dans les joints de grain mais ils peuvent aussi donner naissance à des bulles inter-granulaires. Nous renvoyons à la référence [30] pour plus de détails sur ce phénomène. L'ensemble de ces bulles intra et inter-granulaires induisent un gonflement gazeux de la pastille qui vient s'ajouter au gonflement "solide". Ces gonflements sont considérés comme isotrope au sein de la pastille.

Restructuration HBS et le gonflement induit par les bulles HBS

À fort taux de combustion et en périphérie de la pastille où la température est faible ($T^{\circ}\text{C} < 800\text{-}850^{\circ}\text{C}$), il y a une restructuration du combustible. Cette dernière a été identifiée sur les pastilles UO_2 comme étant caractéristique des pastilles fortement irradiées. Pour ce combustible, la fertilisation neutronique⁵ de l'uranium est plus intense en périphérie de pastille qu'au centre, ce qui conduit à la création d'une quantité plus importante de plutonium 239 qui est un élément fissile en REP. Par conséquent, le taux de combustion dans cette zone est donc plus élevé que le taux de combustion moyen de la pastille, avec pour effet la création d'un grand nombre de défauts dans la structure atomique de l'oxyde [32].

La faible température de cette région ne permet pas la restauration de ces défauts et une transformation complète de la microstructure de la zone est observée : fin du troisième, début du quatrième cycle d'irradiation pour un historique de puissance représentatif d'un fonctionnement normal en REP. Les conséquences, expliquées ici de façon succincte (nous

5. Les réacteurs actuels produisent à partir de l'uranium 238 qui n'est pas fissile (il ne peut pas se désintégrer pour donner de l'énergie), un élément, le plutonium, qui lui l'est ; l'uranium est ainsi "fertilisé". Cette fertilisation est nécessaires pour entretenir la réaction nucléaire initiale [31].

renvoyons le lecteur à la référence [32] pour plus de détails), en sont à la fois une subdivision (restructuration) des grains pour évacuer l'énergie des défauts, un relâchement des gaz de fission xénon et krypton, ainsi que l'apparition d'une fraction volumique importante de bulles inter-granulaires. Les grains restructurés ont une taille réduite d'un facteur 30 à 50. Pour un grain initial de 8 μm de Diamètre de Cercle Equivalent (DCE), le diamètre des grains restructurés est de 0.2 à 0.3 μm . Un grain initial donne alors naissance à plus de 30000 nouveaux grains. Dans le même temps, une importante fraction volumique (>10%) de bulles sphériques inter-granulaires HBS se forme avec des diamètres de 600 nm à 2 μm . En effet, les produits de fission gazeux (xénon et krypton) qui étaient créés dans cette zone et dissous au sein du réseau cristallin, se retrouvent à diffuser très rapidement de l'intra vers l'inter-granulaire et à précipiter sous forme de bulles inter-granulaires : bulles nommée HBS. Ce phénomène de restructuration HBS induit donc un gonflement HBS considéré comme isotrope au sein de la pastille et situé en périphérie de celle-ci. Celui-ci vient donc s'ajouter aux gonflements "solide" et gazeux décrits précédemment.

Fluage de la gaine et de la pastille

En irradiation de base le combustible flue de façon athermique : il s'agit d'un fluage induit par l'irradiation. Dans ce régime de fonctionnement, le fluage thermique du combustible n'est pas activé. Le fluage induit par l'irradiation dépend de la densité de fission qui régnent au sein de la pastille [32].

La gaine, quant à elle, flue sous la pression du réfrigérant (fluage activé par la température et le flux de neutrons rapides). En effet, la pression interne dans le crayon est initialement de 2,5 MPa à froid et augmente à chaud en début d'irradiation. Au cours de la vie du crayon, du fait du relâchement des gaz de fission, cette pression continue d'augmenter mais ne dépasse pas celle du fluide caloporteur. La gaine subit donc une contrainte circulaire de compression et ce tant que le contact pastille gaine n'est pas établi. De surcroît, sous l'effet de l'irradiation, le diamètre de la gaine a donc tendance à diminuer pendant cette phase.

1.6 Phénoménologie de l'interaction pastille-gaine

1.6.1 Problématique

Au début de l'irradiation du crayon, le jeu pastille-gaine est ouvert. Ce jeu se réduit progressivement sous l'effet combiné des phénomènes de gonflements (Rappel : gonflements "solide", gazeux et HBS) et de fluage 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^{ème} ou 3^{ème} cycle d'irradiation du crayon combustible, le jeu se ferme dans un premier temps aux pointes du diabolos de la pastille, puis progressivement celui-ci se ferme totalement car la gaine épouse la forme de la pastille : c'est le phénomène d'interaction pastille-gaine (IPG). La fissuration de la pastille durant l'irradiation implique que le contact entre les deux éléments du crayon est discontinu. De plus, la mise en diabolos de la pastille conduit

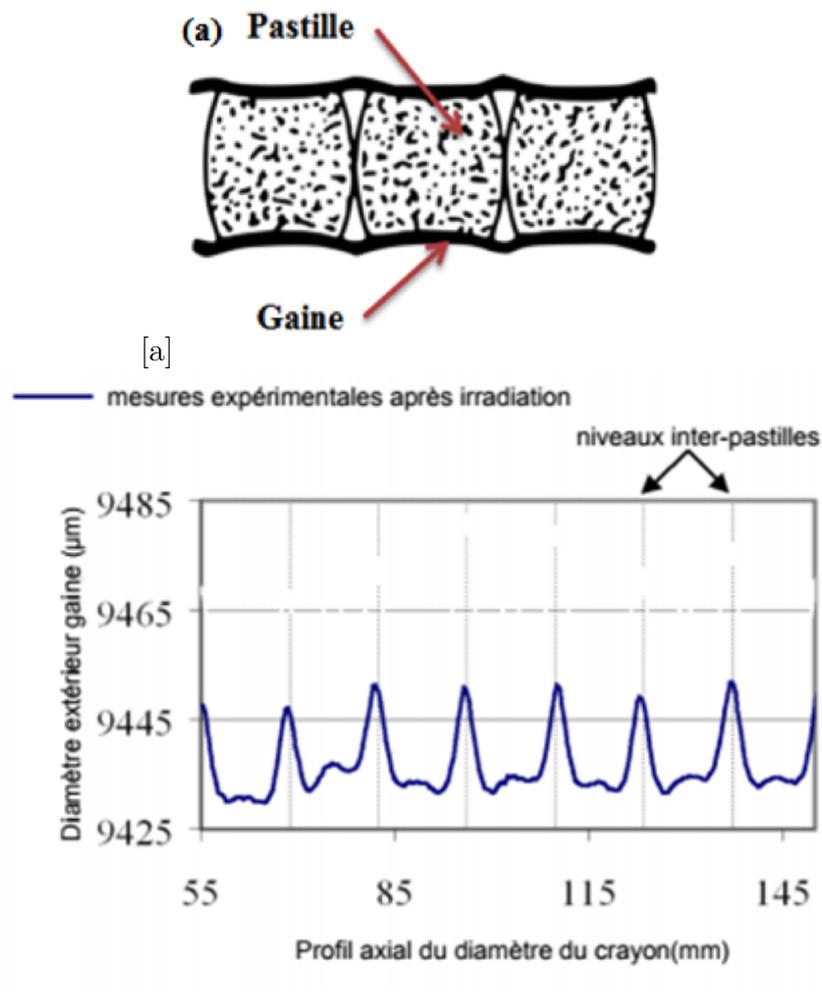


Figure 1.14 – Illustration de l'effet bambou sur la gaine. (a) Représentation schématique des plis primaires et de la déformation en bambou de la gaine [9]; (b) Exemple de profilométrie axiale du diamètre d'un segment de crayon combustible après 2 cycles annuels [10] et [11].

à la formation de 'plis primaires' au niveau des plans inter-pastilles de la gaine présentant ainsi une forme de bambou comme le montre la figure 1.14. Ces plis constituent un lieu de concentration de contraintes où peut se localiser la rupture de la gaine, rupture qu'il faut éviter puisque la gaine est la première barrière de confinement des matières radioactives.

L'équilibre mécanique du crayon est alors conditionné par l'évolution géométrique du jeu pastille-gaine, qui peut être décomposée en trois étapes, représentées dans la Figure 1.15.

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 zircone⁶ interne dense de l'ordre de 10 à 15 μm maximum se développe par oxydation aux points de contacts entre la pastille et la gaine. Cette couche peut conduire à un collage chimique entre la pastille et la gaine et à une non-réouverture du jeu pastille-gaine : une certaine épaisseur de combustible restant collée à la gaine. La réouverture du jeu se produisant plus en

6. Dans le reste du manuscrit les mots : zircone, ZrO_2 et couche d'oxyde seront utilisés pour décrire la couche de zircone.

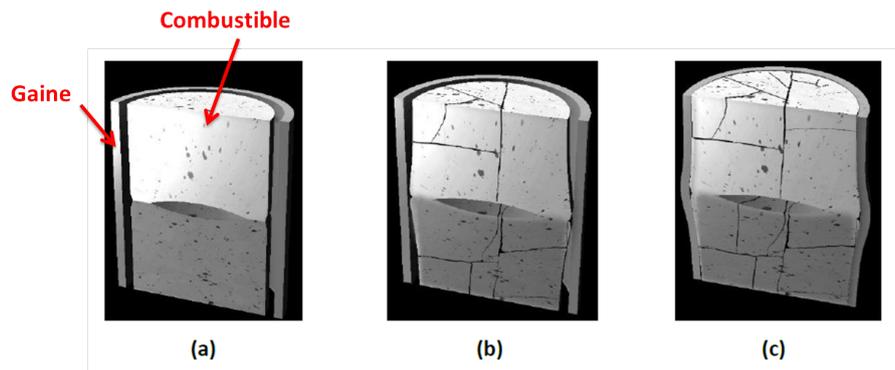


Figure 1.15 – Coupe longitudinale montrant l'évolution chronologique du crayon, (a) état initial, (b) fracturation et mise en "diabolo" et (c) comblement du jeu pastille-gaine d'après [12].

amont dans le combustible par le développement de fissures circonférentielles. De plus, au cours de l'irradiation et suivant le type de gainage considéré, la gaine, au contact du caloporteur, s'oxyde et s'hydrique en peau externe de façon plus ou moins exacerbée (l'épaisseur de zirconium (externe et poreuse) maximale peut atteindre pour certain type de gainage 80 à 100 μm : exemple le Zy-4). Ce phénomène d'oxydation externe de la gaine est très différent de celui qui se développe en peau interne de gaine. Ci-après nous faisons donc une parenthèse pour décrire l'origine de l'oxydation externe et interne de la gaine.

Oxydation externe des gaines

L'oxygène présente une grande affinité avec le zirconium. Il est donc très difficile d'éviter qu'une couche d'oxyde ne se forme à la surface d'un alliage de zirconium, même à la température ambiante [33]. La réaction d'oxydation de la face externe de la gaine par l'eau du circuit primaire est la suivante : $(Zr_{(s)} + 2H_2O_{(l)} \rightarrow ZrO_{2(s)} + 2H_{2(g)})$, elle libère de l'hydrogène [34]. Une partie de cette quantité d'hydrogène est absorbée par la gaine au cours de l'irradiation (en solution solide dans la matrice, précipitée sous forme d'hydruure) : ce phénomène est appelé : l'hydruration de la gaine. En fonctionnement normal, ce phénomène est plus ou moins exacerbé suivant le gainage considéré. L'hydruration modifie les propriétés mécaniques de la gaine : variation de la résistance au fluage, à la rupture, etc. En parallèle la gaine se corrode et forme une couche de zirconium externe (ZrO_2) qui s'accroît au cours de l'irradiation. La cinétique de développement de cette couche de zirconium dépend à l'ordre un de la température à l'interface métal oxyde (axialement la couche de zirconium externe est plus importante au point chaud du crayon). La cinétique et l'amplitude de cette couche de zirconium dépendent également de l'alliage de zirconium considéré : par exemple une gaine en M5 se corrode et s'hydrique beaucoup moins qu'une gaine en Zy-4 bas étain. En fonctionnement normal, l'épaisseur de cette couche de zirconium est un critère limitatif de la durée de vie du crayon car la gaine peut se fragiliser (desquamation, délamination). En effet après 4 ou 5 cycles en réacteur, la couche de zirconium, dense et adhérente à l'interface métal/oxyde, présente de nombreuses porosités à l'interface oxyde/eau. L'épaisseur de l'oxyde peut atteindre 100 μm pour des gaines en Zy-4. Des fissures circonférentielles apparaissent parfois à la frontière entre ces deux morphologies de zirconium et peuvent conduire à un détachement mécanique de la couche externe poreuse (figure 1.16).

Oxydation interne des gaines [35]

Sur la base d'observations métallographiques d'échantillons standards de crayons irradiés 1, 2 et 3 cycles en réacteur, il ressort que l'apparition de la zircone interne n'intervient généralement qu'à partir du deuxième, voire du troisième cycle passé en réacteur. La zircone apparaît à ce niveau d'irradiation car il est nécessaire d'avoir un contact entre le combustible et la gaine pour permettre la diffusion de l'oxygène à l'état solide, et que ce contact n'intervient généralement qu'au cours du deuxième cycle en réacteur. La couche de zircone observée à la face interne de la gaine se présente alors dans un premier temps sous la forme d'îlots de 5 à 8 μm d'épaisseur (à partir de 2 cycles), tendant à se développer latéralement jusqu'à couvrir la majeure partie de la surface interne du gainage (après 3 cycles en réacteur). Elle semble à ce stade dense, et présente des interfaces régulières côté combustible et côté gaine, malgré de légères ondulations observables côté gaine. La comparaison de métallographies réalisées sur des échantillons de crayons à combustible UO_2 ou MOX, gainés Zircaloy-4 ou M5, ne montre pas de différences de faciès significatives de la zircone (figure 1.17). La référence [36] présente une description plus complète de la formation de cette couche de zircone.

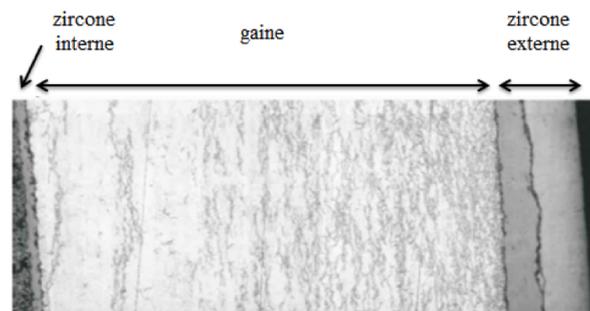


Figure 1.16 – Coupe radiale d'un crayon $\text{UO}_2/\text{Zy-4}$ irradié.

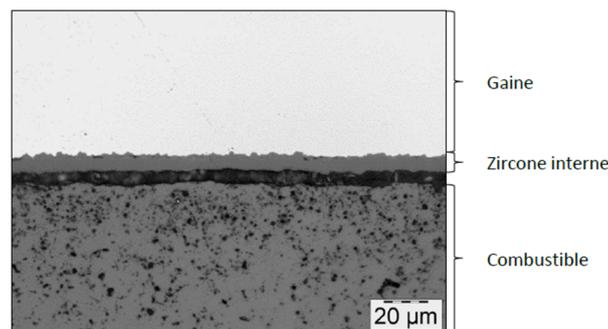


Figure 1.17 – Micrographies optiques de l'interface combustible-gaine d'un crayon combustible (zone supérieure : gainage métallique, zone inférieure : combustible restructuré, zone intermédiaire : zircone interne).

Classement des états de l'interface pastille-gaine

Les examens métallographiques effectués sur coupes radiales ou axiales de crayons irradiés ont permis de décrire les différents aspects possibles de la zone d'interface pastille-gaine. Afin de simplifier la conception d'échantillons simulants, une représentation simplifiée de

l'interface pastille-gaine a été choisie permettant de distinguer quatre catégories de l'état de cette interface (Figure 1.18) :

- **Catégorie I** : Pas de zirconium interne, jeu pastille-gaine ouvert de 10 à 100 μm .
- **Catégorie II** : Présence de zirconium interne soit sous forme d'une couche discontinue azimutalement (îlots d'épaisseur de zirconium de 1 à 5 μm), soit sous forme d'une couche continue azimutalement d'épaisseur de zirconium de 5 à 10 μm , jeu pastille-gaine ouvert de 1 à 30 μm .
- **Catégorie III** : Présence de zirconium interne (1 à 10 μm), présence de combustible (1 à 20 μm d'épaisseur) adhérent à la couche de zirconium avec surface de fracture du combustible rugueuse et accrochage combustible/zirconium sous forme de dendrites de zirconium pénétrant dans le combustible, jeu pastille-gaine ouvert (10 μm).
- **Catégorie IV** : Présence de zirconium interne (1 à 10 μm), combustible adhérent à la couche de zirconium ($> 20 \mu\text{m}$).

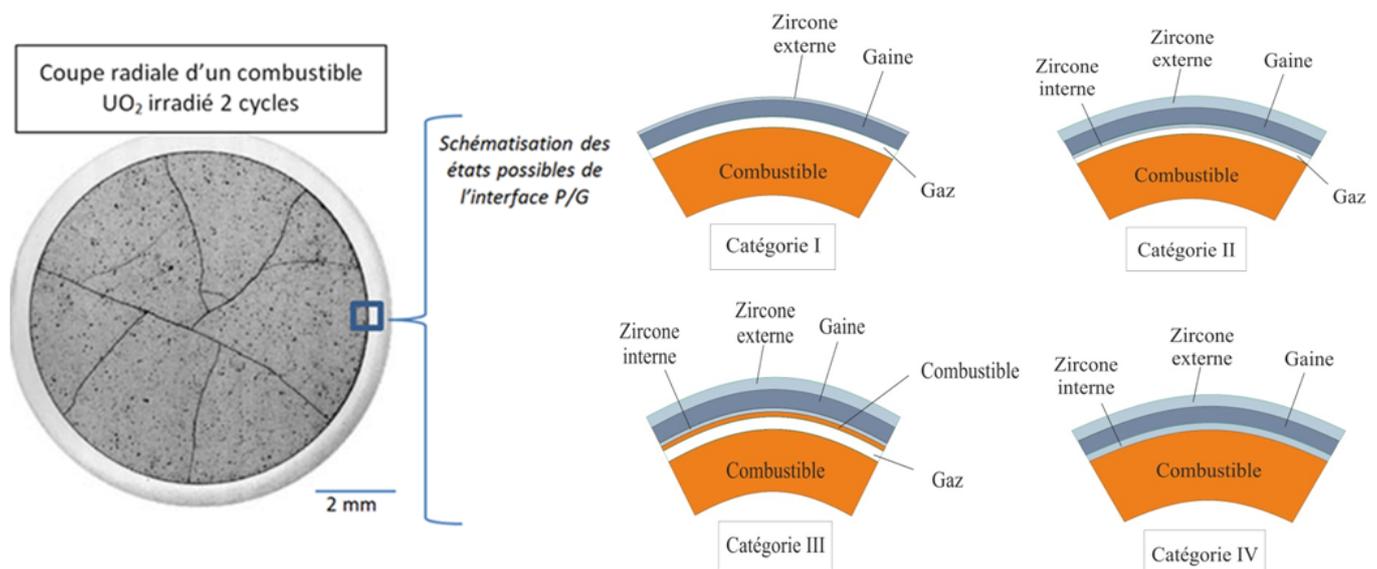


Figure 1.18 – Etat de l'interface pastille-gaine.

Dans les 4 catégories, la gaine est recouverte d'une couche de zirconium externe (de 1 à 100 μm), qui n'est pas uniforme et qui peut varier azimutalement et axialement tout au long de la surface externe du crayon. Il est probable d'avoir sur une même zone du crayon un mélange des 4 catégories. Dans la suite de ce travail, cette couche est présente sur les aspects expérimentaux et de la modélisation du système multicouche pour s'approcher des cas réels de mesure d'interfaces du crayon de combustible.

L'épaisseur de gaine métallique (0,57 mm en nominal) varie elle aussi, soit de par la fabrication (tolérance sur les épaisseurs de gaine de 10 μm environ), soit de par la création de la zirconium externe et de la formation des plis primaires lors du contact entre la pastille et la gaine.

Dans les catégories I et II, observées sur des crayons faiblement ou moyennement irradiés, le jeu pastille-gaine est ouvert, mais la présence de zirconium interne (épaisseur inférieure à 10 μm) dans la catégorie II indique qu'il y a eu contact en cours d'irradiation entre la pastille et la gaine. Dans la catégorie III, la présence de combustible adhérent à la couche de zirconium interne peut être interprétée comme le signe d'un contact fort durant

l'irradiation. Enfin la catégorie IV peut être observée sur des crayons fortement irradiés. La différence avec la catégorie III vient de l'épaisseur de combustible collé à la gaine. Il faut noter que même dans la catégorie IV, le gaz est présent, mais plus loin de l'interface (la réouverture du jeu se produisant plus en amont dans le combustible par le développement de fissures circonférentielles).

Sur une même pastille, plusieurs catégories d'interfaces peuvent co-exister soit axialement, soit azimutalement, car les conditions de contact peuvent être localement différentes, à cause de la présence :

- de chanfreins en extrémités de pastilles,
- d'hétérogénéités initiales de géométrie de la pastille ou de la gaine (rugosité, ovalisation, épaisseurs),
- de la forme en bambou des pastilles, le contact s'établissant d'abord là où le diamètre de pastille est le plus fort.

1.6.2 Besoin industriel

L'interface pastille-gaine joue un rôle primordial dans le comportement du crayon combustible REP en fonctionnement normal mais également si celui-ci venait à subir des transitoires incidentels ou accidentels (décrits dans l'introduction générale). Par conséquent, cette interface pastille gaine doit être connue le mieux possible. Actuellement, seuls des examens destructifs après découpe du crayon irradié en base en REP ou de mini-crayons⁷ ayant subi un transitoire incidentel ou accidentel en réacteurs expérimentaux permettent de visualiser l'interface pastille-gaine. La métallographie, la microscopie optique et la microscopie électronique à balayage (MEB) sont les méthodes les plus utilisées pour atteindre cet objectif. Toutefois, les essais expérimentaux, qui sont généralement complexes et coûteux, nécessitent une préparation préalable des échantillons en cellule de haute activité et limitent de ce fait le nombre d'expériences permettant la bonne compréhension de cette zone. De plus, ces analyses sont réalisées uniquement après irradiation. Or, dans le cas des mini-crayons subissant des transitoires incidentels ou accidentels en réacteurs expérimentaux, les industriels aimeraient pouvoir connaître précisément l'interface pastille-gaine axialement et azimutalement sur tout le mini-crayon et ce avant de tirer le transitoire. Cette méthode doit être obligatoirement non destructive afin de pouvoir réaliser par la suite le transitoire. Une technique d'imagerie haute résolution en profondeur par microscopie acoustique peut répondre à cette problématique.

L'objectif de la thèse est d'établir la faisabilité de cette technique sur des objets de géométrie cylindrique, avec une résolution compatible avec le besoin industriel, tout en anticipant la réalisation ultérieure de mesures en cellules chaudes.

7. Un mini-crayon désigne un segment de crayon prélevé sur un crayon REP irradié en base, re-fabriqué, pressurisé et subissant un transitoire incidentel ou accidentel en réacteur expérimental.

1.7 Conclusion

Après avoir décrit le contexte industriel dans lequel se situe ce travail, la problématique de l'interaction pastille-gaine qui se produit au cours de l'irradiation des crayons combustibles a été présentée. Dans ce chapitre nous avons vu que le crayon combustible subit plusieurs transformations durant son séjour dans le réacteur nucléaire. Par conséquent et pour atteindre les objectifs de la thèse exposés précédemment, il est important de concevoir un système de mesure ultrasonore pour l'imagerie de la face interne d'un tube métallique dont l'épaisseur est $570 \mu\text{m}$. Plus précisément, il faut réaliser un outil capable de produire depuis la face externe de la gaine de crayons combustibles une image ultrasonore en profondeur de sa face interne en vue de caractériser de manière non destructive, à terme en cellule chaude, l'interface entre les pastilles et la gaine. Les îlots de zircone présents sur les faces de la gaine et les chanfreins des pastilles de combustible sont de l'ordre de quelques dizaine de microns nécessitant ainsi une imagerie ultrasonore en profondeur de haute résolution. Ceci implique l'utilisation des ultrasons focalisés et d'une très grande fréquence dépassant 100 MHz. Ce dispositif expérimental, basé sur un microscope acoustique haute fréquence, constituera une innovation et une avancée importante dans la caractérisation haute résolution en profondeur des surfaces courbes. C'est pourquoi, la méthode ultrasonore utilisée pour la visualisation de l'interface pastille-gaine sera présentée dans le chapitre suivant.

II

Microscopie acoustique haute fréquence dédiée à l'imagerie haute résolution en profondeur

Sommaire

2.1	Introduction	46
2.2	Généralités sur la microscopie acoustique	46
2.3	Microscope acoustique : principe de fonctionnement	48
2.3.1	Caractéristiques d'une onde ultrasonore	48
2.3.2	Principe de fonctionnement du microscope acoustique	49
2.4	Microscope acoustique : transduction et résolution	51
2.4.1	Transducteur acoustique	51
2.4.2	Ligne à retard	51
2.4.3	Lentille acoustique	51
2.4.4	Le liquide de couplage	52
2.4.5	Résolution	52
2.5	Etude de la résolution du capteur acoustique	54
2.5.1	Principe de la photolithographie	55
2.5.2	Conclusion	63

2.1 Introduction

Ce deuxième chapitre présente d'abord les notions de base de la microscopie acoustique qui est au cœur de l'acquisition de données pour reconstruire une image 2D de la face interne de la gaine du crayon de combustible. Ensuite, quelques éléments concernant la méthode ultrasonore sur laquelle se basent les expérimentations seront donnés. La fin de ce chapitre sera consacrée à la présentation du transducteur ultrasonore utilisé dans cette thèse. Ainsi, nous nous attarderons plus longtemps sur la notion de la résolution latérale qui est un élément essentiel dans l'imagerie en profondeur.

2.2 Généralités sur la microscopie acoustique

La microscopie acoustique (SAM : Scanning Acoustic Microscopy) est une technique non-destructive de visualisation qui peut fournir des images en profondeur de la matière, avec une résolution allant jusqu'au micron. Sokolov fut le premier à découvrir son concept en 1940 [37] qui se base sur l'utilisation des ultrasons de fréquences suffisamment élevées (de quelques MHz à plusieurs GHz). La réalisation du microscope acoustique à balayage n'a cependant été possible qu'après le développement d'une électronique haute fréquence, et la fabrication, via des techniques de micro-mécanique, d'une lentille acoustique. En 1973, R. A. Lemons et C. F. Quate [38] ont réalisé les premières expériences de microscopie acoustique en mode de transmission. Les dispositifs développés permettent de réaliser des images ultrasonores avec une très grande résolution. Ce type de microscope fonctionne avec deux lentilles disposées de façon confocales, et de deux éléments piézoélectriques, l'un agissant comme émetteur, le second comme récepteur (Figure 2.1).

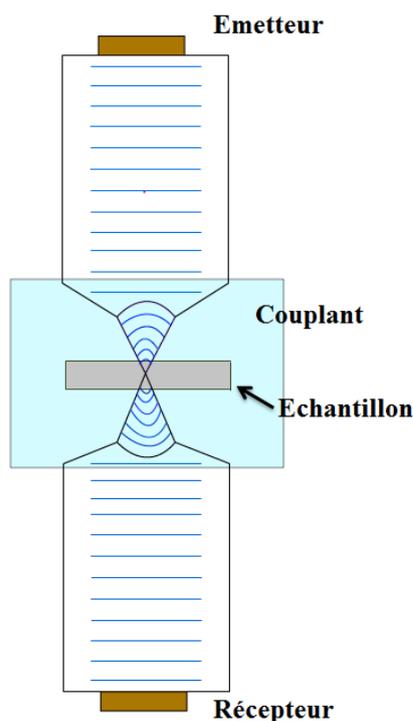


Figure 2.1 – Schéma des capteurs acoustiques en transmission.

Peu de temps après, les mêmes auteurs développèrent le premier microscope acoustique fonctionnant en mode de réflexion [39] dans lequel une seule lentille assure à la fois l'émission et la réception (Figure 2.2). Depuis, le microscope acoustique à balayage est devenu un outil important d'évaluation non destructive autorisant l'imagerie, la micro-caractérisation et la détection des défauts dans la structure des matériaux [40]. Les avantages significatifs du SAM (en micro caractérisation quantitative ou qualitative) sont :

1. sa capacité de caractériser les différents types de matériaux, y compris optiquement opaques, pour des observations à la surface et au sein de la matière [39],
2. le contraste des images lié aux propriétés mécaniques de l'échantillon.

Les applications de la microscopie acoustique sont nombreuses et variées dans le secteur du contrôle non destructif des matériaux. Nous citons à titre d'exemple :

- En microélectronique : inspection des microcircuits permettant de détecter les nombreuses défaillances nuisibles à la fiabilité des composants (défauts, problèmes d'adhérence, etc.) [41].
- Dans la métallurgie : analyse en profondeur pour les problèmes de soudures, fractures, décollements, etc [41].
- Dans le domaine nucléaire :
 - Quantification de l'endommagement par irradiation des matériaux utilisés dans les réacteurs nucléaires [42].
 - Etude des propriétés élastiques du combustible dans trois situations particulières : combustible en utilisation normale en réacteur nucléaire, combustible stocké après la période d'irradiation et combustible en conditions extrêmes suite à un accident nucléaire. Ceci constitue les travaux réalisés dans le cadre de la thèse de Mara Marchetti [43].

Cependant, la majorité des applications actuelles de la microscopie acoustique sont généralement réalisées dans des configurations planes utilisant souvent les basses fréquences. Le travail réalisé dans le cadre de cette thèse doit permettre de réaliser une imagerie par microscopie acoustique en utilisant :

- Des ultrasons focalisés de très hautes fréquences permettant d'imager en haute résolution une interface en profondeur (typiquement 570 μm de gainage du crayon de combustible).
- Une tête de mesure utilisée dans une configuration cylindrique permettant d'avoir une image sur toute la circonférence du tube de gainage.

Dans le cadre de cette étude, la microscopie en mode de transmission n'est pas envisageable. Elle nécessiterait en effet le déploiement d'un transducteur de part et l'autre du crayon combustible, complexifiant le dispositif. Ceci augmenterait de plus les distances de propagation, engendrant une grande atténuation des hautes fréquences employées du fait de la haute résolution recherchée. Dans ces conditions, le dispositif développé dans les sections suivantes sera basé sur une imagerie en mode réflexion. Il autorisera l'étude de l'interface pastille-gaine à partir du signal émis et reçu par un même capteur.

Pour un microscope acoustique à balayage classique (imagerie d'échantillon plan), la partie mécanique est constituée essentiellement de deux systèmes de déplacement, l'un pour le

balayage dans le plan parallèle (XY) parallèle à la surface de l'échantillon et l'autre pour le déplacement vertical du capteur selon l'axe (Z). Ces deux types de déplacement permettront respectivement de réaliser une image de surface ou de profondeur.

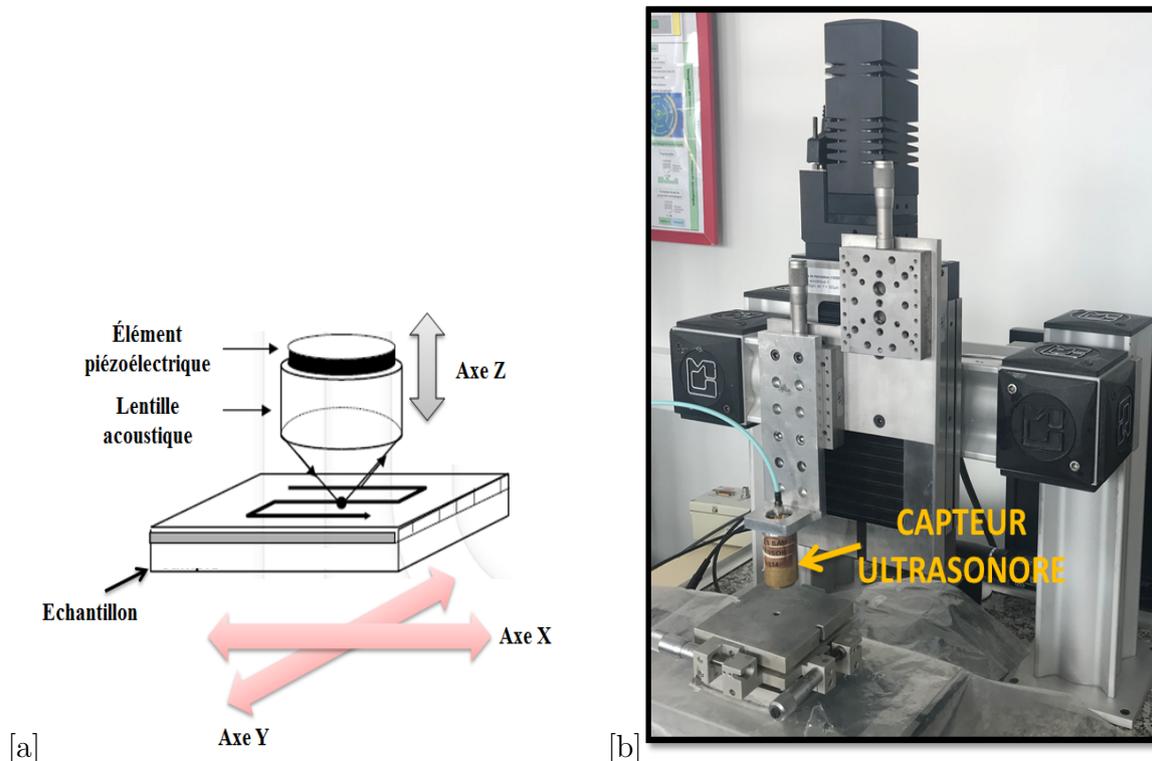


Figure 2.2 – Configuration schématique du microscope acoustique à balayage dans le cas d'un échantillon plan. (a) Schéma fonctionnel; (b) Photographie.

Dans le reste du manuscrit, les différentes composantes du microscope acoustique pour l'imagerie en profondeur seront détaillées.

2.3 Microscope acoustique : principe de fonctionnement

2.3.1 Caractéristiques d'une onde ultrasonore

Les ultrasons sont de même nature que les sons audibles par l'oreille humaine (20 Hz-20 kHz), seule sa fréquence est supérieure. C'est une onde mécanique qui se propage sous forme d'une variation de pression dans le milieu. L'onde se propage ainsi de proche en proche. La vitesse de propagation d'une onde dans un milieu est en toute rigueur appelée célérité et notée c^1 . Un son est caractérisé par deux grandeurs principales :

1. sa fréquence centrale f_0 et sa bande passante,
2. et son amplitude A .

1. Cependant, par abus de langage nous parlerons de vitesse ultrasonore dans le reste de ce manuscrit. D'ailleurs à ne pas confondre avec la vitesse particulière qui est la vitesse d'oscillation des tranches de matière.

Une nouvelle grandeur apparaît, la longueur d'onde λ , qui est homogène à une longueur. Elle représente la distance parcourue par l'onde pendant une période

$$T_0 = \frac{1}{f_0}. \quad (2.1)$$

La fréquence f_0 est liée à la longueur d'onde λ d'une onde ultrasonore par l'équation (1.1).

$$\lambda = \frac{c}{f_0}. \quad (2.2)$$

2.3.2 Principe de fonctionnement du microscope acoustique

C'est un système (figure 2.3) dans lequel le transducteur piézoélectrique² est excité électriquement et convertit un signal électrique haute fréquence en un signal acoustique se propageant à la même fréquence. Ce matériau piézoélectrique est fixé sur l'une des faces plane et polie d'une ligne à retard préalablement métallisée (Figure 2.3). Sur la deuxième face est taillée avec soin une lentille qui permet de focaliser l'onde sur l'échantillon examiné. Un liquide de couplage est nécessaire pour assurer la transmission de l'onde acoustique. L'atténuation dans le liquide de couplage intervient mais cela dépend des fréquences utilisées [39].

Du fait de la réciprocité des phénomènes physiques mis en jeu et de la symétrie du système, le faisceau ultrasonore est alors réfléchi vers le transducteur où il est de nouveau converti en une tension électrique. Lors d'un balayage bi-dimensionnel, la tension enregistrée en chaque position est fonction des caractéristiques de réflectivité locale de l'échantillon et permet la construction d'une image.

Le principe général de la microscopie acoustique est présenté dans la figure 2.3. Le microscope acoustique développé dans la présente étude fonctionne avec une fréquence centrale de 150 MHz permettant l'obtention d'images 2D avec une résolution de quelques dizaines de microns (cette partie sera détaillée dans ce qui suit). Le système peut permettre l'acquisition des échos de surface et de profondeur.

La majorité des contrôles non destructifs par ultrasons fonctionnent sur le phénomène de changement d'impédance acoustique. Une analogie peut être faite avec l'optique où le changement de milieu durant la propagation d'une onde donne naissance à deux ondes, une transmise et une réfléchie [13] (figure 2.4). Au même titre que l'optique, le changement d'impédance acoustique, analogue à l'indice optique, fait intervenir un coefficient de réflexion et de transmission relatif à l'amplitude de l'onde incidente. Si l'onde acoustique est plane alors l'impédance acoustique est définie par [44] :

$$Z = \rho v \quad (2.3)$$

où

2. Au cours de cette thèse, le terme capteur sera assimilé, par abus de langage au terme de transducteur pour décrire une sonde.

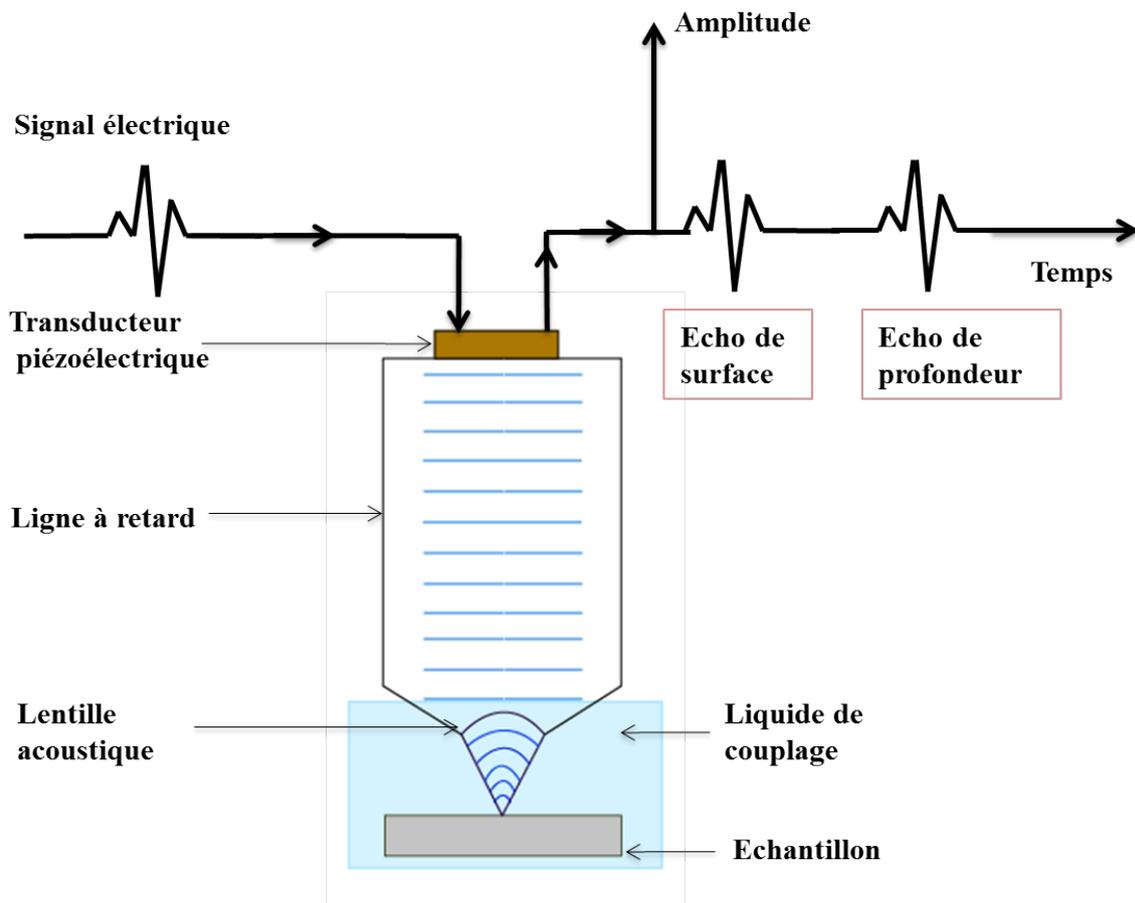


Figure 2.3 – Schéma du capteur et des trajets acoustiques en mode réflexion.

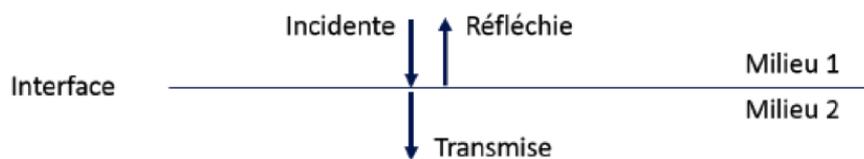


Figure 2.4 – Changement d'indice acoustique.

- ρ est la masse volumique du milieu exprimée en $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$,
- v la vitesse du son dans le milieu, exprimée en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$.

Elle s'exprime en Rayleigh ou MRayl. Dans le cas d'une onde plane ayant une incidence normale se propageant vers l'interface de deux matériaux semi-finis, les coefficients de réflexion r et de transmission t en amplitude sont respectivement définis par :

$$r = \frac{Z_2 - Z_1}{Z_2 + Z_1}, \quad (2.4)$$

$$t = \frac{2Z_2}{Z_2 + Z_1}. \quad (2.5)$$

2.4 Microscope acoustique : transduction et résolution

2.4.1 Transducteur acoustique

Le transducteur ultrasonore comprend une pastille piézoélectrique (Niobate de Lithium pour le transducteur considéré dans cette étude) permettant la conversion d'énergie électrique en énergie mécanique et réciproquement d'énergie mécanique en énergie électrique. Lors de l'excitation, le champ électrique appliqué entre les deux électrodes entraîne une mise en vibration du matériau piézoélectrique. La longueur d'onde λ de l'onde acoustique générée dépend alors de l'épaisseur e du matériau via la relation $\lambda = 2e$. Le matériau vibre donc à la fréquence $f = c/(2e)$ où c est la vitesse de propagation des ondes ultrasonores dans le matériau piézoélectrique. En matière d'imagerie acoustique, plus la fréquence employée sera élevée plus la longueur d'onde sera courte et donc meilleure sera la résolution [45], en vertu du critère de Rayleigh.

2.4.2 Ligne à retard

La ligne à retard, généralement un barreau cylindrique en saphir ou en silice de grande pureté, assure la propagation des ondes ultrasonores et permet la séparation temporelle des signaux incidents et réfléchis par le matériau étudié.

2.4.3 Lentille acoustique

La lentille acoustique est un élément crucial du microscope acoustique et doit être taillée avec soin pour assurer une qualité d'image optimale [46]. Son rôle est de focaliser les ondes planes propagées dans la ligne à retard [39]. Dans le cadre de cette étude, une lentille de type hémisphérique sera employée. Le choix de la lentille dépend de plusieurs paramètres comme la résolution souhaitée, le liquide de couplage utilisé et la profondeur traversée par les ultrasons pour réaliser une image. La figure 2.5 illustre l'effet de la focalisation par une lentille acoustique sur la propagation des ultrasons délivrés par le transducteur utilisé dans ce travail.

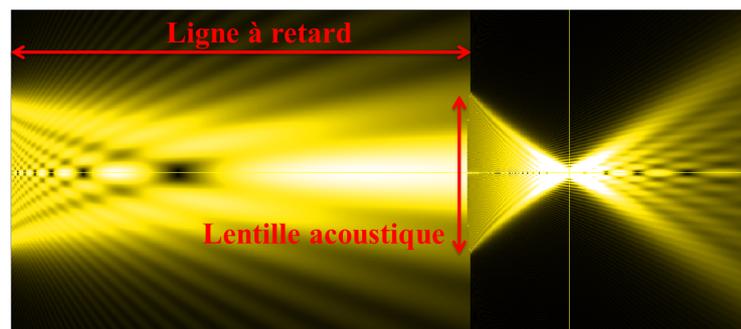


Figure 2.5 – Simulation du rayonnement acoustique d'un transducteur focalisé à la surface d'une gaine ayant une fréquence centrale de 150 MHz [13].

2.4.4 Le liquide de couplage

Parce que les ondes acoustiques sont des ondes mécaniques, un milieu de couplage adéquat est nécessaire entre le transducteur et l'échantillon. L'air n'est pas un choix pertinent en raison de sa grande différence d'impédance avec la ligne à retard et de sa forte atténuation en hautes fréquences. Un milieu fluide, plus dense et moins atténuant, autorisant de plus un déplacement de la sonde, s'avère être un choix plus judicieux. Le rôle du liquide de couplage est capital. De lui dépendent la résolution, la pénétration, et la nature des matériaux qui pourront être observés [45]. Jusqu'à présent, le milieu de couplage le plus largement utilisé est l'eau, car, il peut offrir une bonne mouillabilité, une atténuation acoustique relativement faible et une bonne inertie chimique [39].

Avant de présenter la description des autres parties du microscope acoustique, les sections suivantes exposent quelques notions théoriques essentielles à la compréhension des résultats du prochain chapitre.

2.4.5 Résolution

La résolution des images obtenues est déterminée par la durée de l'écho d'une part et par la répartition spatiale du faisceau acoustique d'autre part. Ces deux grandeurs définissent respectivement la résolution axiale et la résolution latérale.

1. **Résolution axiale :**

La résolution axiale représente la distance minimale permettant la différenciation de deux structures situées sur l'axe du faisceau acoustique. Elle dépend de la durée de la réponse impulsionnelle du transducteur et donc de sa bande passante et du traitement de signal [47].

2. **Résolution latérale :**

La résolution latérale se définit comme la distance minimale permettant la différenciation de deux cibles situées sur l'axe perpendiculaire au faisceau acoustique. Elle est liée à la largeur du faisceau acoustique et dépend directement de la fréquence d'excitation du capteur. Toutefois, elle n'est pas constante sur tout le faisceau et est liée à son diamètre qui dépend de l'ouverture de la lentille [48]. Comme en optique, la résolution latérale, essentiellement due à la diffraction, s'écrit sous la forme [49] :

$$R = \frac{0.51\lambda}{\sin(\theta_1)}, \quad (2.6)$$

où θ_1 est l'ouverture de la lentille (Figure 2.6) et λ la longueur d'onde dans le matériau. Sachant que la vitesse de propagation des ultrasons est plus faible dans le liquide couplant que dans le matériau à étudier, la vitesse de propagation dans l'échantillon doit être prise en compte dans le cas d'une imagerie en profondeur. De ce fait la résolution sera plus faible en profondeur qu'en surface.

Le transducteur employé dans ce travail a été réalisé, grâce à l'expérience de l'équipe M²A, au sein du laboratoire IES avant le début de cette thèse. Ses caractéristiques sont choisies pour répondre au besoin de l'étude :

- Une fréquence centrale de 150 MHz permettant d'imager en haute résolution une interface en profondeur (typiquement 570 μm de gainage).

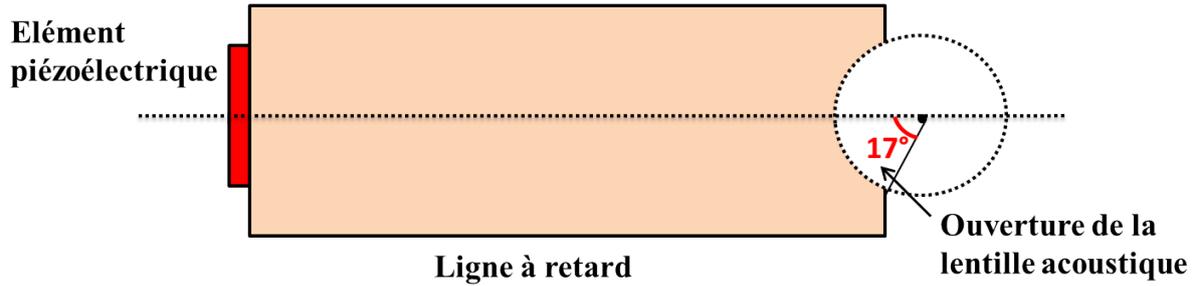


Figure 2.6 – Schéma montrant l'ouverture du transducteur acoustique.

- Une demi-ouverture de lentille acoustique de 17° permettant ainsi de ne pas générer d'ondes de surfaces perturbant l'imagerie de la gaine.

Ainsi selon l'équation 2.6 la résolution latérale du transducteur utilisé dans ce travail est de $17.44 \mu\text{m}$ à la surface de l'échantillon. En déplaçant le transducteur verticalement, l'énergie acoustique sera concentrée à l'interface de l'échantillon visualisé sur la figure 2.7. Cependant, dans ce cas l'ouverture de la lentille aura une nouvelle valeur calculée par les Lois de Snell-Descartes appliquées dans la cas d'une incidence sur une interface plane. La relation entre θ_1 et la nouvelle ouverture de la lentille est donnée ci-dessous :

$$\frac{\sin\theta_2}{\sin\theta_1} = \frac{v_3}{v_2}, \quad (2.7)$$

où v_2 et v_3 sont respectivement la vitesse longitudinale de propagation des ultrasons dans l'eau (1500 m/s) et dans le matériau de l'échantillon étudié (dans le cas d'une gaine en Zircaloy-4, la vitesse de propagation est 4715 m/s). Ainsi, la nouvelle ouverture est donnée par la formule suivante :

$$\theta_2 = \arcsin \frac{v_3 \sin \theta_1}{v_2} \quad (2.8)$$

dont la valeur est $\theta_2=66^\circ$.

En utilisant l'équation 2.6 la résolution latérale théorique en profondeur du transducteur acoustique à 150 MHz serait au niveau de la face interne de la gaine en Zircaloy-4 de l'ordre de $20 \mu\text{m}$. Cependant, comme le transducteur est excité par pulse, il faudrait prendre en compte les résolutions calculées sur la bande passante c'est-à-dire de 100 à 200 MHz. In fine, nous considérons par la suite pour simplifier les choses qu'en moyenne la résolution attendue se situe autour de $30 \mu\text{m}$. Les parties expérimentales ont pour objectif de vérifier l'ordre de grandeur précédemment cité.

3. Distance focale :

Pour réaliser une image de l'interface pastille-gaine à haute résolution, la distance focale du capteur joue un rôle primordial car c'est à cette distance que se concentre la majeure partie de l'énergie acoustique conduisant à un écho réfléchi de puissance maximale. La distance focale du capteur acoustique dépend de l'échantillon, de l'angle de l'ouverture de la lentille et des paramètres expérimentaux. Elle s'écrit sous la forme :

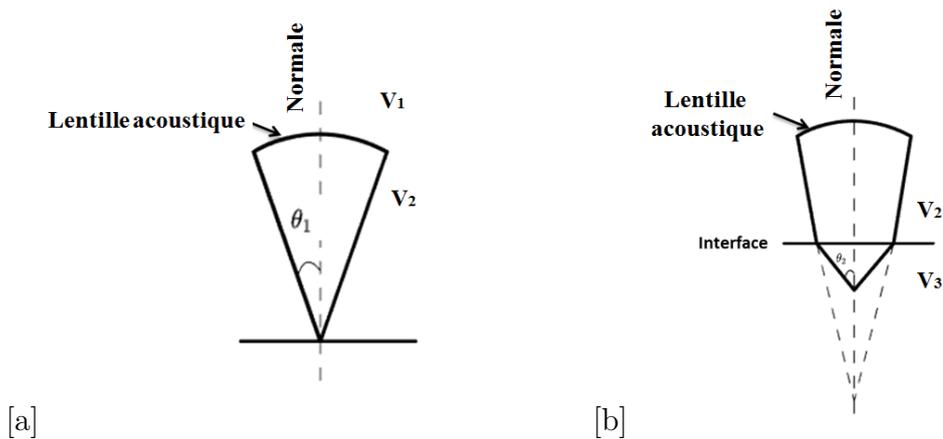


Figure 2.7 – Faisceau acoustique focalisé à (a) la surface (b) en profondeur de l'échantillon à investiguer.

$$d_0 = \frac{r}{1 - N} \quad (2.9)$$

où d_0 est la distance focale, r est le rayon de la courbure de la lentille et N le rapport relatif des vitesses entre la lentille et le milieu de couplage.

Pour cette étude, avec une épaisseur de gaine de Zircaloy-4 de $570 \mu\text{m}$, la distance focale est 3.8 mm . Cela permet de prendre en compte la couche d'eau utilisée en tant que liquide de couplage pour la propagation des ultrasons.

2.5 Etude de la résolution du capteur acoustique

Le transducteur acoustique décrit dans ce chapitre sera utilisé pour la caractérisation de l'interface pastille-gaine dans tout le reste de ce manuscrit. Il est important de vérifier expérimentalement sa résolution latérale en profondeur avant de l'utiliser pour l'imagerie des tubes de gainage³. À l'échelle du faisceau acoustique (Résolution latérale théorique surfacique = $17.44 \mu\text{m}$ et Résolution latérale théorique en profondeur de la gaine autour de $30 \mu\text{m}$), la géométrie du crayon ($\varnothing \approx 1\text{cm}$) peut être considérée comme plane et donc les études qui sont menées sur structures planes, pourront être extrapolées aux gaines cylindriques.

C'est ainsi que la présente étude est réalisée sur matériaux plans, beaucoup plus simples à mettre en œuvre. Une image a tout d'abord été réalisée en l'intégrant à un microscope acoustique du laboratoire permettant une imagerie dans une configuration plane. Un tout premier échantillon disponible au laboratoire a été utilisé.

Il s'agit d'un masque de silicium intégrant des plots carrés dont la taille est de $30 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$. L'image a été réalisée à partir de la face inférieure de l'échantillon (Figure (2.8)) afin de simuler une imagerie en profondeur.

3. La vérification de la résolution latérale dans une géométrie cylindrique est réalisée dans la dernière partie du chapitre 3

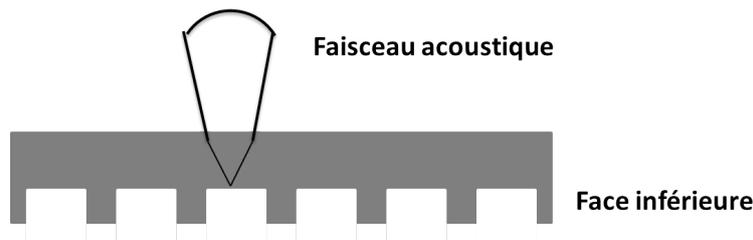


Figure 2.8 – Représentation de l'imagerie du masque de silicium.

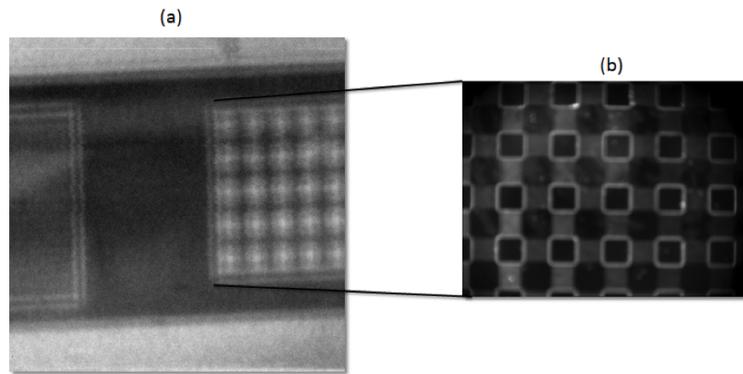


Figure 2.9 – Images (a) acoustique et (b) optique d'un masque de silicium dont chaque plot est de dimension $30 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$.

Cette première image, présentée sur la figure 2.9, confirme que la fréquence de fonctionnement du capteur permet de visualiser des plots de $30 \mu\text{m}$ de côté de l'ordre de grandeur de la tâche focale qui est aux alentours de $30 \mu\text{m}$. De manière à quantifier précisément la résolution du transducteur utilisé, des échantillons de référence ont été ensuite conçus, au sein de la salle blanche CTM de l'université de Montpellier à l'IES, par photolithographie de résine (représentant la couche à détecter) sur des substrats en verre (simulant la gaine).

2.5.1 Principe de la photolithographie

Principe

La photolithographie est une technique qui permet de définir des motifs grâce à des résines photo- ou électro- sensibles. L'étape clé de ce procédé consiste à dupliquer un motif (ou son complément) dans une couche de résine. Il existe plusieurs façons de reproduire le motif dans la résine. Pour notre étude, ceci a été accompli principalement par exposition de la résine à un rayonnement UV. Celle-ci est étalée par une technique de centrifugation appelée spin-coating (Figure 2.10 (b)) dans laquelle un plateau tournant permet, grâce à un réglage de sa vitesse de rotation, d'étaler uniformément la résine. Plus la vitesse de rotation est importante, plus l'épaisseur du film est faible. Le dépôt est ensuite séché pour éliminer les produits les plus volatils, puis insolé à travers un masque. Après révélation chimique et rinçage, une cuisson durcit la résine. La zone non protégée par les UV est ensuite retirée de la surface du substrat par un solvant chimique puissant tel que l'acétone. Après ces opérations (Figure 2.10 (a)), le motif complémentaire du motif existant sur le masque de départ est créé. Dans le cadre de notre étude, le dépôt a été réalisé sur des substrats en verre.

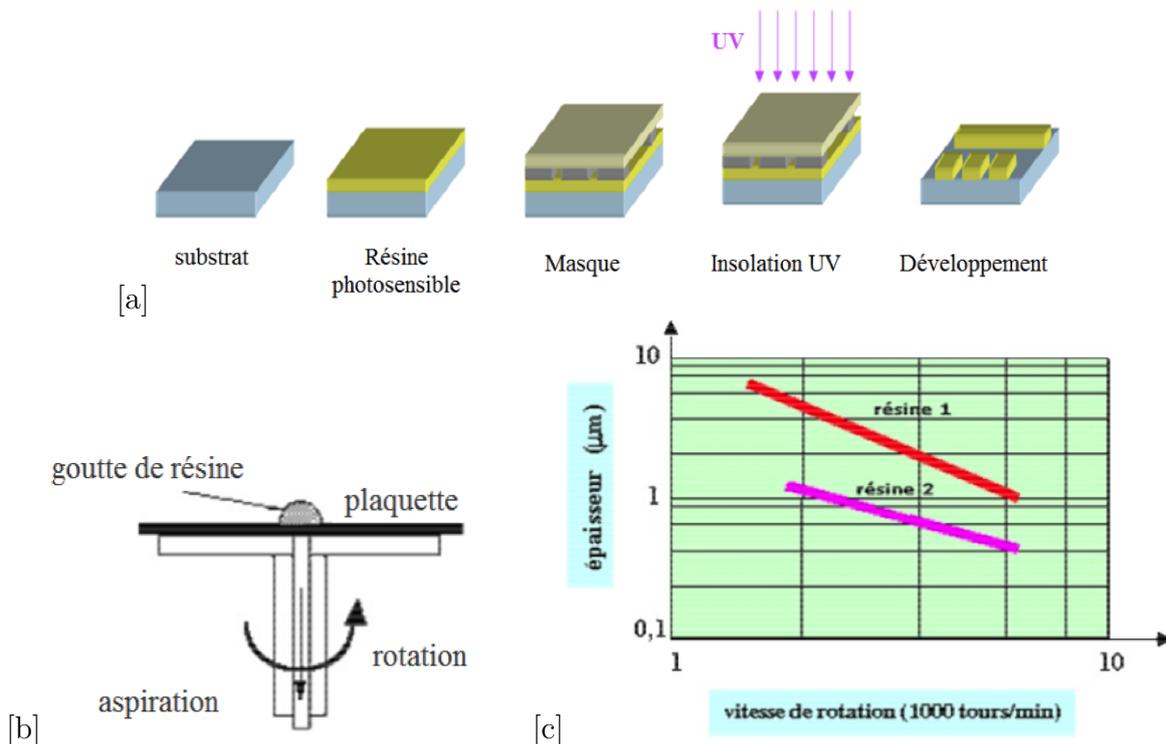


Figure 2.10 – (a) étapes du dépôt de la résine sur le substrat ; (b) étalement de la résine par tournette ; (c) épaisseur obtenue de résine photosensible en fonction de la vitesse de rotation pour deux résines différentes.

Épaisseur de la résine

La figure 2.10 (c) montre les épaisseurs obtenues pour deux types de résine en fonction de la vitesse de rotation exprimée en tours par minute. En prenant en considération la vitesse de rotation de la tournette et le coefficient de viscosité de la résine, qui lui aussi influence sur son épaisseur, nous avons opté pour une résine : Az nLof 2068 conduisant à un film d'une épaisseur de $6,8 \mu\text{m}$. Le contrôle de l'épaisseur de la résine est important car il permettra, dans les conditions de laboratoire exposées, d'estimer l'épaisseur seuil de dépôt détectable par le microscope.

Choix de l'échantillon de référence

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 notre échantillon plan de référence doit être considéré avec attention. La figure 2.11 montre en effet que 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. De plus, dans les conditions de fabrication

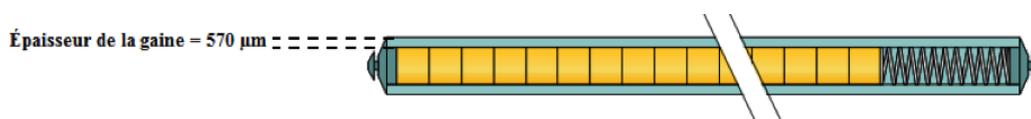


Figure 2.11 – Représentation d'une gaine de combustible.

imposées par la salle blanche, les matériaux choisis sont représentatifs du coefficient de

Table 2.1 – Impédances acoustiques

Matériaux	Densité (kg/m ³)	Vitesse du son (m/s)	Impédance acoustique (MRay)
Zicaloy-4 [50]	6560	4715	30.9
UO ₂ poreux [29]	10400	5180	53.8
Verre [50]	2204	6000	13.4
Résine [50]	2500	4300	10.75

réflexion existant au niveau des interfaces Zircaloy-4/UO₂. 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 2.12. Le tableau 2.1 présente les impédances acoustiques du Zircaloy-4, de l'oxyde d'uranium, du verre et de la résine.



Figure 2.12 – Coefficients de réflexion d'ondes planes au niveau des différentes interfaces du crayon combustible et de l'échantillon de référence.

Le démonstrateur choisi est réalisé dans le cadre d'une étude du laboratoire permettant d'analyser la résolution du capteur ultrasonore en tenant en compte les contraintes expérimentales liées aux échantillons et aux conditions de travail. Dans ce cas, le verre/résine n'est pas tout à fait représentatif du cas zy4/zircone interne (catégorie II présentée au chapitre précédent). En effet, le verre représente dans ce cas d'étude le Zy-4 et la résine représente l'UO₂ : ce cas ne correspond pas aux différentes catégories exposées dans le chapitre précédent. Nous renvoyons au chapitre 4 pour une analyse par catégories de la face interne de la gaine.

Résolution latérale

Pour l'étude de la résolution latérale, il a été choisi de déposer la résine sur un substrat en verre (Figure 2.13 (a)), par conséquent du fait des propriétés mécaniques du verre [51], la dimension de la tâche focale sera de l'ordre de 30 μm . Le motif choisi est "IES" du nom du laboratoire (Figures 2.13 (b) et 2.14 (b)). Quatre échantillons dont la largeur du trait de lettrage est comprise entre 30 et 60 μm ont été fabriqués. L'épaisseur des traits est de 6,8 μm . Comme présenté sur la figure 2.14 (a), les images sont réalisées à partir de la face arrière de l'échantillon, conduisant à une distance traversée par les ultrasons de 500 μm .

Les images acoustiques obtenues, présentées sur les figures 2.15 (a) à 2.15 (d), montrent que le capteur réalisé et le traitement de signal (qui sera présenté dans le chapitre 3) permettent d'imager ce type de structures avec une résolution latérale meilleure que 30 μm .

Observons sur la figure 2.17 les signaux en niveau de gris des interfaces mesurées sur deux

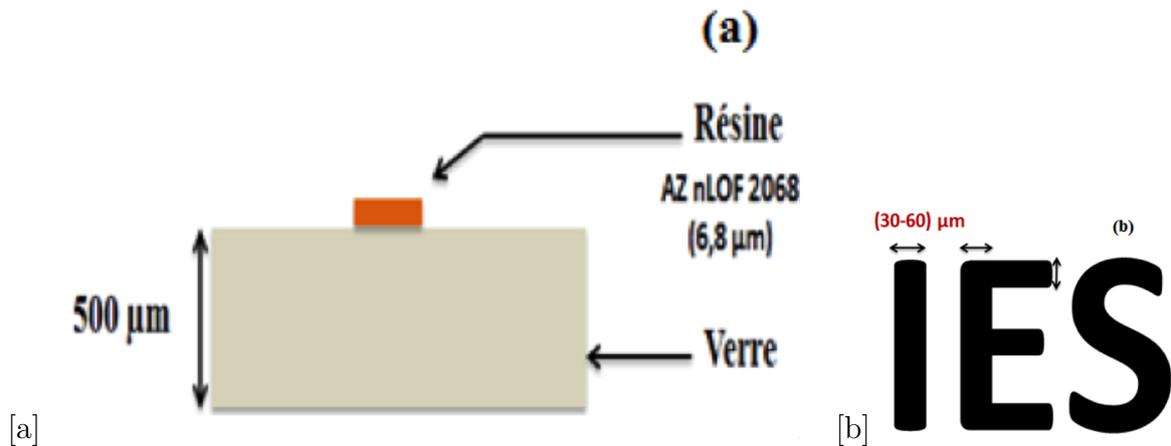


Figure 2.13 – Représentation a) du dépôt de la résine et b) de la résolution du trait de lettrage.

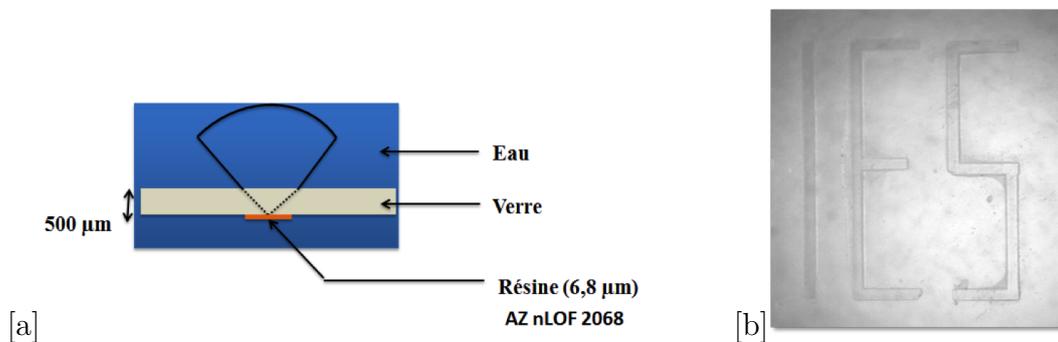


Figure 2.14 – (a) Imagerie de l'échantillon de référence; (b) Image optique du motif 'IES' en résine pour un trait de lettrage de 60 μm.

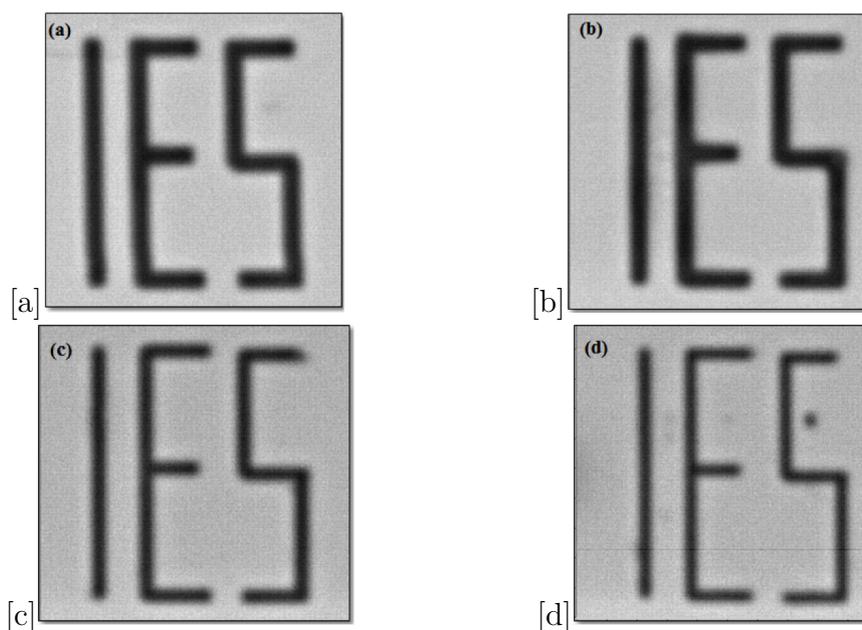


Figure 2.15 – Images acoustiques du motif 'IES' en résine pour de 7 μm d'épaisseur et de largeur de trait de (a) 60 μm, (b) 50 μm, (c) 40 μm et (d) 30 μm.

lignes différentes des images ultrasonores visualisés sur une échelle de gris variant du noir au blanc du motif "IES" (Figure 2.16). Les valeurs de niveau de gris des interfaces

Résine/Eau sont inférieures à celles des interfaces Verre/Eau car la réflexion sur cette dernière est plus importante.

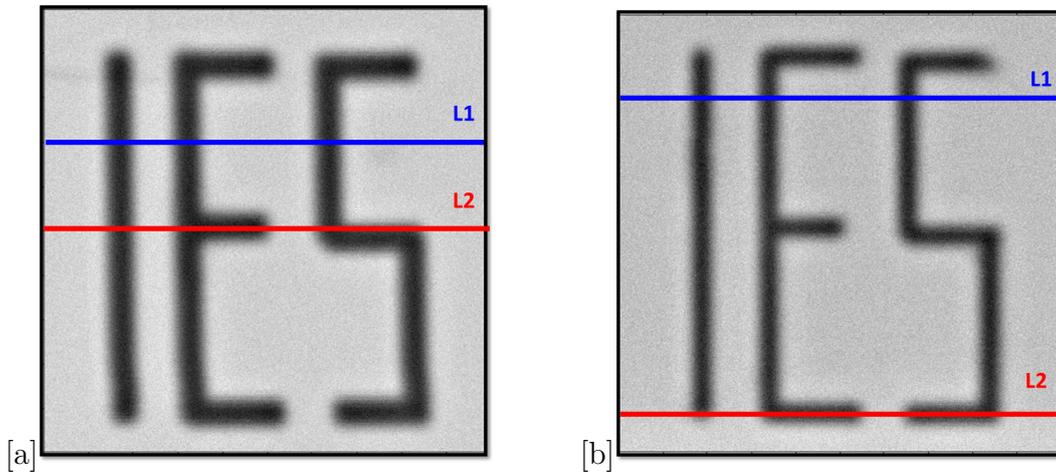


Figure 2.16 – Images ultrasonore en profondeur du motif "IES" pour une résolution latérale de (a) $60 \mu\text{m}$, (b) $40 \mu\text{m}$.

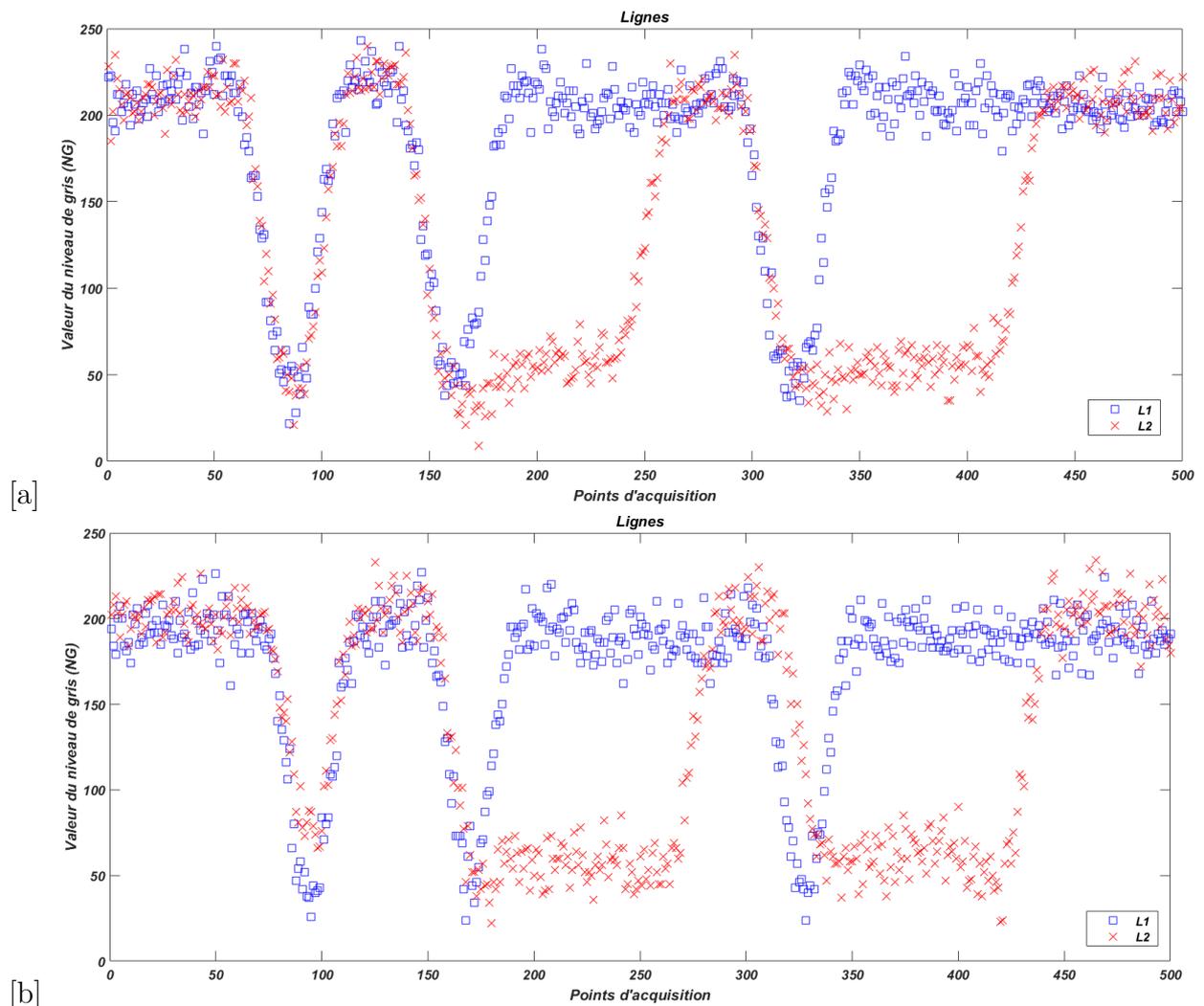


Figure 2.17 – Profil de niveau de gris de la face interne de l'échantillon possédant le motif "IES" en (a) L1, (b) L2.

De manière à quantifier plus précisément la résolution du transducteur acoustique, un second motif 'IES' en résine de $3\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et de largeur de trait de $20\ \mu\text{m}$, $15\ \mu\text{m}$, $10\ \mu\text{m}$ et $5\ \mu\text{m}$ a été réalisé. Les images correspondantes sont présentées sur les figures 2.18 (e) à 2.18 (h).

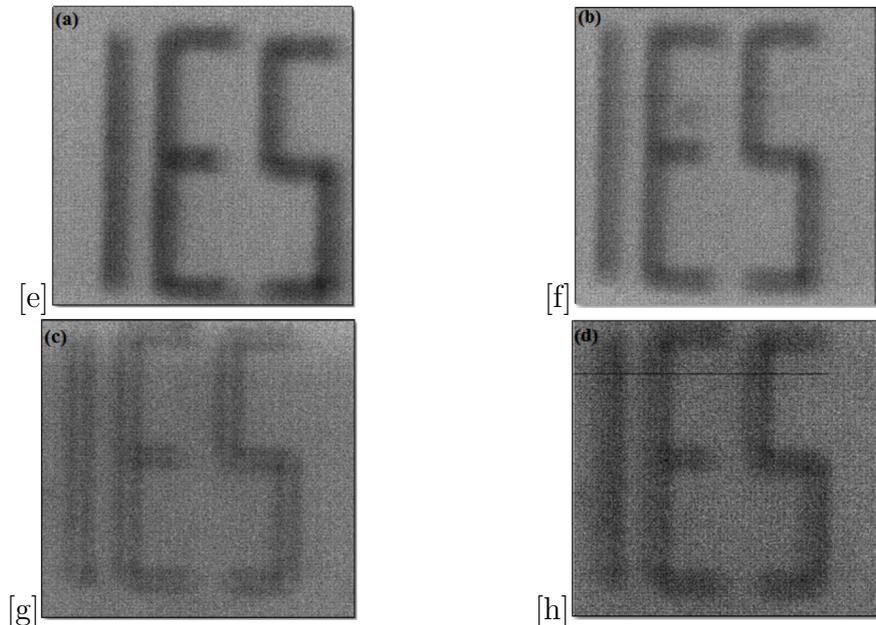


Figure 2.18 – Images acoustiques du motif 'IES' en résine de $3\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et de largeur de trait de (e) $20\ \mu\text{m}$, (f) $15\ \mu\text{m}$, (g) $10\ \mu\text{m}$ et (h) $5\ \mu\text{m}$.

Le motif IES est visible même pour une largeur de trait de $5\ \mu\text{m}$. Comme attendu, du fait de la largeur du faisceau acoustique, le trait mesuré sur l'image acoustique est néanmoins de l'ordre de $20\ \mu\text{m}$. Ces essais confirment que le transducteur peut détecter des objets de l'ordre de grandeur de la tache focale qui est aux alentours de $30\ \mu\text{m}$ sur un échantillon Verre/Résine plan et que la fréquence choisie permet néanmoins de visualiser des structures plus fines. Nous allons voir dans le prochain chapitre les résolutions visualisées par ce transducteur acoustique quand il sera implanté dans le dispositif ultrasonore dédié à l'imagerie de l'interface pastille-gaine.

Résolution Axiale

La vérification de la résolution axiale du microscope est essentielle pour déterminer l'épaisseur minimale de dépôt détectable. De la même manière que la résolution latérale, des échantillons avec différentes épaisseurs ($2,7\ \mu\text{m}$, $5,8\ \mu\text{m}$, $10\ \mu\text{m}$) ont été fabriqués par photolithographie à la salle blanche comme montré respectivement sur les figures 2.19 (a), 2.19 (b) et 2.19 (c).

Le motif choisi⁴ pour ces échantillons est présenté dans la figure 2.20.

La figure 2.21 représente les images ultrasonores acquises correspondantes aux échantillons fabriqués pour la détermination de l'épaisseur minimale qui peut être détectable par

4. La fabrication du masque pour réaliser un motif en résine sur du verre nécessite au moins 3 jours de préparation. De plus, la résine utilisée dans ces expériences se dissout rapidement dans le liquide de couplage nécessaire pour la propagation des ultrasons durant l'imagerie acoustique. Afin de gagner du temps nous avons utilisé un autre masque disponible à la salle blanche au lieu de fabriquer un autre masque du motif "IES" pour chaque épaisseur.

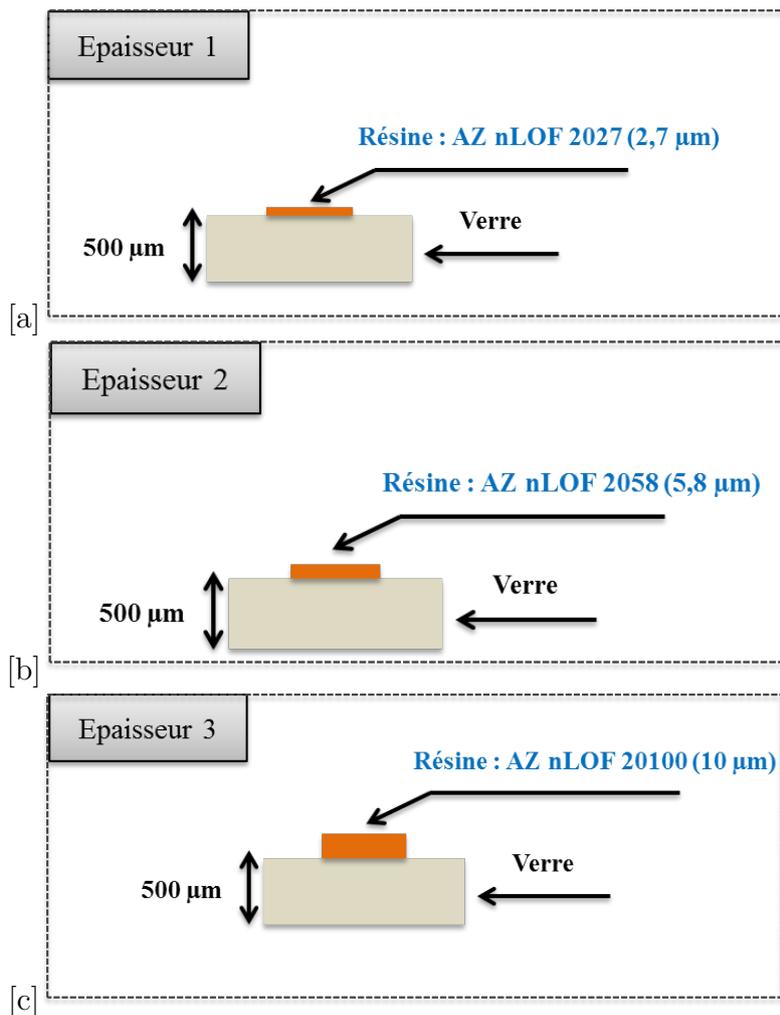


Figure 2.19 – Dépôt de la résine sur un substrat en verre pour une épaisseur de (a) 2.8 μm (b) 5.8 μm et (c) 10 μm.

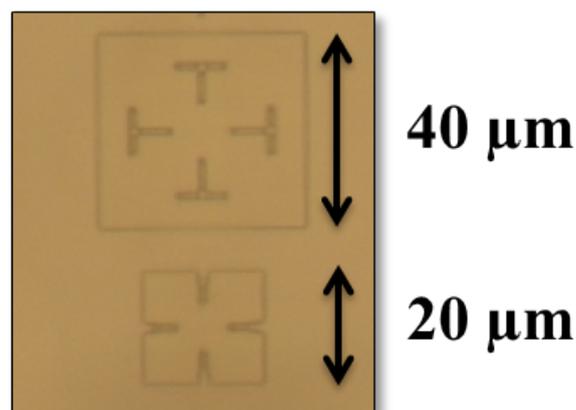


Figure 2.20 – Image optique du motif utilisé pour le dépôt de la résine.

le transducteur acoustique. Les effets remarquables sur les bords des images sont dus à la résine qui commence à se dissoudre rapidement dans le liquide de couplage durant l'imagerie.

La figure 2.22 prouve que les valeurs de niveaux de gris correspondantes à chaque épaisseur

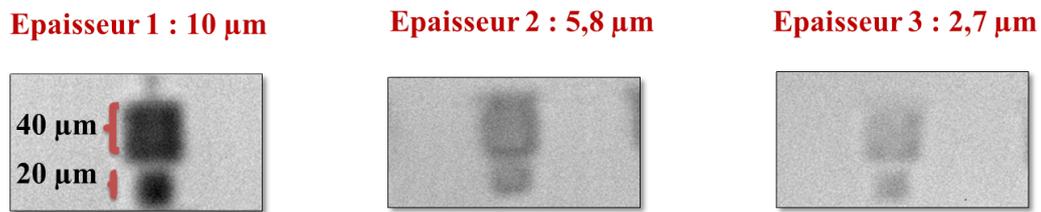


Figure 2.21 – Images ultrasonores des échantillons fabriqués pour la détermination de l'épaisseur seuil.

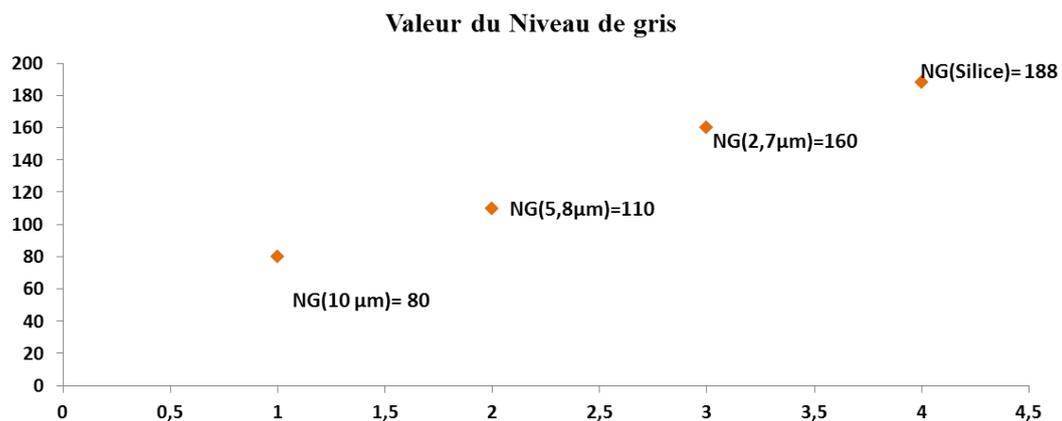


Figure 2.22 – Valeurs de niveaux de gris correspondantes à chaque épaisseur de résine.

de résine sont différenciables. Ainsi, ces essais réalisés montrent qu'une épaisseur seuil de 2.7 µm reste encore détectable par le capteur ultrasonore utilisé dans une configuration favorable.

Synthèse

Tous ces résultats sur les résolutions axiales et latérales sont compatibles avec les mesures souhaitées sur les crayons après irradiation en base ou sur les mini-crayons avant et après transitoires incidentels ou accidentels :

- épaisseur minimale mesurée représentative de l'épaisseur minimale de zircone interne qui peut se produire dans le crayon,
- épaisseur minimale représentative de l'épaisseur minimale de combustible qui peut rester collée à la zircone interne dans le crayon,
- résolution latérale mesurée représentative des îlots de zircone interne qui peuvent se former dans le crayon.

Cette analyse s'est néanmoins limitée à des matériaux tels que le verre et la résine qui sont représentatifs des coefficients de réflexion à l'interface entre le Zy-4 et l'UO₂, mais elle n'a pas abordé les cas suivants :

- Zy-4/Zircone interne (catégorie II exposée au chapitre précédent).
- Zy-4/Zircone interne/UO₂ avec épaisseur plus ou moins importante (catégories III et IV du chapitre précédent).

2.5.2 Conclusion

Ce chapitre, consacré à la microscopie acoustique en mode de réflexion, a mis l'accent sur cette méthode de caractérisation et d'imagerie utilisant des ondes mécaniques de fréquences élevées autorisant une imagerie haute résolution de l'intérieur de matériaux. Afin de valider le choix du transducteur ultrasonore utilisé dans ce travail une étude de résolution a été faite. Pour cela, nous avons réalisé des échantillons à la salle blanche de l'université de Montpellier par dépôt de résine sur des substrats en verre. Le transducteur choisi a été monté sur un microscope acoustique classique plan du laboratoire. Les images réalisées montrent que le transducteur choisi permet d'obtenir une résolution latérale meilleure que $20 \mu\text{m}$, et une résolution axiale atteignant $3 \mu\text{m}$ sur ces échantillons plans dans des conditions idéales. L'acquisition d'images sur objets cylindriques nécessite la conception et la réalisation d'un banc et d'une tête de mesure adaptés, décrits dans le chapitre suivant.

III

Microscopie acoustique haute fréquence sur cylindre

Sommaire

3.1	Introduction	66
3.1.1	Partie Mécanique	66
3.1.2	Partie électronique	66
3.1.3	Imagerie acoustique	66
3.1.4	Acquisition - Visualisation de l'image	68
3.2	Résultats obtenus par le prototype ultrasonore	73
3.2.1	Premières acquisitions ultrasonores	73
3.2.2	Imagerie par le prototype ultrasonore sur gaines	77
3.3	Conclusion	79

3.1 Introduction

Ce troisième chapitre présente le microscope acoustique ultrasonore haute fréquence dédié à l'imagerie de cylindres. Le principe de fonctionnement et les éléments de base de la microscopie acoustique plane seront toujours utilisés pour ce nouveau prototype ultrasonore mais ils seront adaptés aux différentes conditions et contraintes qui peuvent exister lors de l'imagerie de l'interface pastille-gaine ; objectif primordial des travaux de recherche de cette thèse. Pour cela nous allons décrire dans ce chapitre les nouvelles parties conçues et adaptées au nouveau banc de mesure. En fonction des résultats obtenus, des optimisations seront présentées par la suite. A la fin de ce chapitre, les images obtenues par le prototype du microscope acoustique seront visualisées pour montrer la capacité du couple {transducteur, système ultrasonore} à obtenir des images avec la résolution souhaitée.

3.1.1 Partie Mécanique

Pour des raisons de confidentialité, la partie mécanique de la nouvelle tête de mesure ne sera pas présentée dans ce manuscrit.

3.1.2 Partie électronique

Electronique de commande et d'acquisition d'images [52]

L'électronique de commande (Figure 3.1) permet d'exciter le transducteur piézoélectrique par un générateur d'impulsions à hautes fréquences émettant des impulsions électriques courtes.

Cette impulsion dure quelques dizaines de nanosecondes pour une amplitude de plus de 100 Volts. Ce type d'excitation très large bande va alors être filtrée par le capteur et générer des ondes acoustiques dont la fréquence centrale est reliée à l'épaisseur du matériau piézoélectrique. La séparation temporelle sera alors d'autant meilleure que le capteur est à large bande. Le signal réfléchi est ensuite dirigé vers le transducteur à travers un circulateur. L'écho recueilli est alors très affaibli par rapport à l'impulsion initiale. Cette perte d'énergie est principalement liée aux désadaptations d'impédances électrique et acoustique, aux conversions dans le transducteur, au coefficient de réflexion des ultrasons sur l'échantillon et aux différentes atténuations lors du parcours de l'onde. Un filtre passe bande élimine la plupart des parasites. Il permet de plus de définir une fréquence qui servira de référence lors du traitement numérique des résultats. Le signal électrique porteur de l'information, converti en un signal quantifié, est ensuite envoyé à une unité de traitement numérique.

3.1.3 Imagerie acoustique

L'imagerie ultrasonore est régie par les lois de l'acoustique. Elle est basée sur les phénomènes liés à la propagation des ondes mécaniques dans les milieux physiques. Son principe général repose sur la détection des amplitudes et des retards des signaux renvoyés par les milieux traversés.

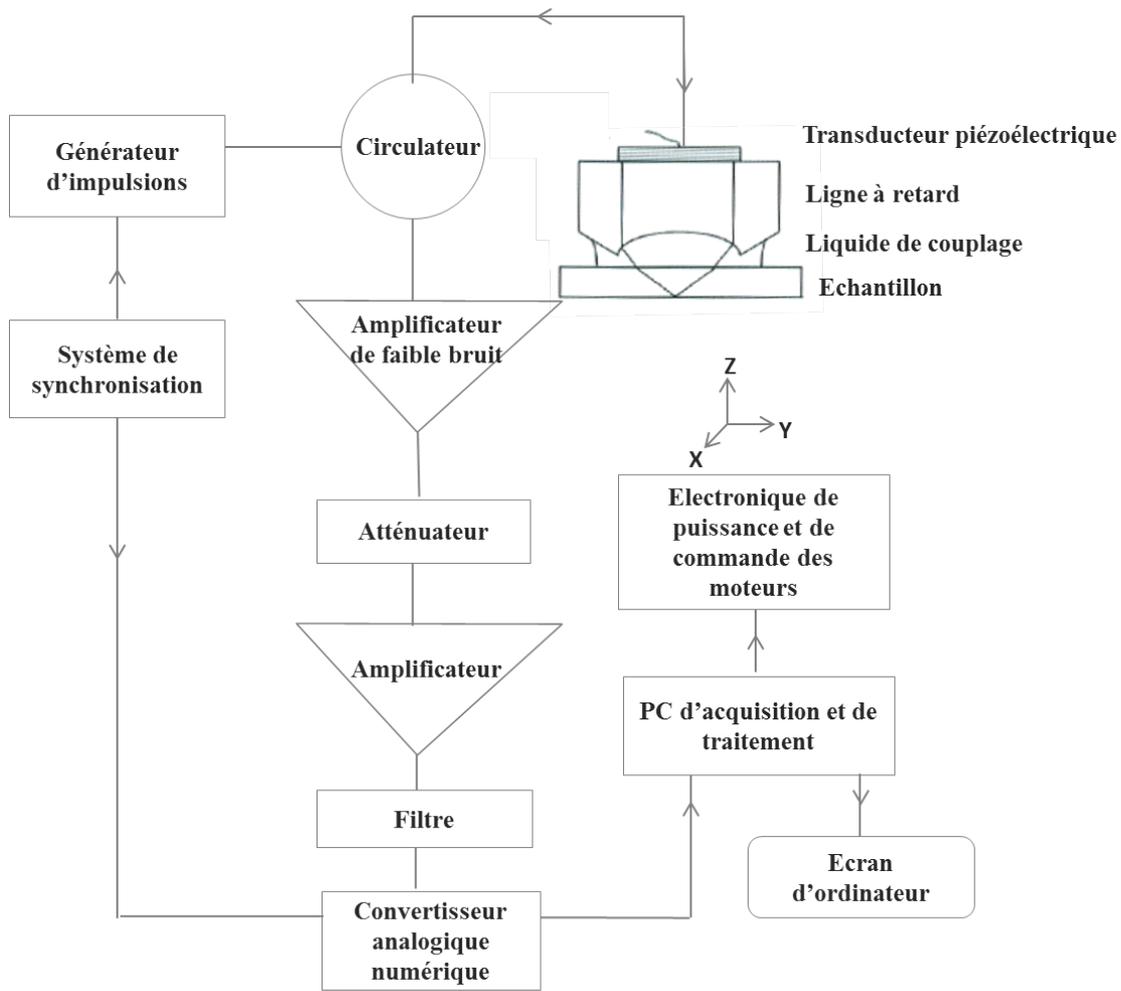


Figure 3.1 – Schéma bloc du microscope acoustique haute fréquence [14].

Construction d'une image ultrasonore

L'exploration des échantillons est réalisée en pratique par l'envoi d'une impulsion ultrasonore puis l'étude du signal reçu. L'émission et la réception de l'impulsion ultrasonore sont réalisées au moyen d'un même transducteur piézoélectrique comme il a été expliqué dans le chapitre précédent. Ce transducteur réalise la conversion entre un signal électrique et une déformation mécanique lors de l'émission et inversement lors de la réception. Le transducteur est en phase d'écoute lorsqu'il attend les échos. Il est indispensable de laisser un temps d'écoute suffisant pour pouvoir former un signal. Cette contrainte est gérée par la fréquence de répétition des tirs. Les échos nous fournissent directement une information sur la nature des interfaces rencontrées. L'amplitude renseigne sur l'impédance du milieu et la durée entre l'émission et la réception renseigne sur sa distance par rapport au transducteur ; la célérité étant supposée connue. La relation entre la durée Δt et la distance "d" est donnée par l'équation 3.1 :

$$d = \frac{c\Delta t}{2}. \quad (3.1)$$

Le rapport 2 provient du fait que le signal reçu a effectué un aller-retour.

Imagerie de surface

Le principe de l'imagerie de surface consiste à focaliser le faisceau acoustique incident sur la surface (Figure 3.2 (a)). Du fait de la résolution axiale du dispositif, il est considéré que l'imagerie n'intégrera que les structures contenues dans la tâche focale [39].

Imagerie en profondeur

Une autre application de la microscopie acoustique est l'imagerie en profondeur. Celle-ci permet de visualiser les structures internes des matériaux même s'ils sont opaques aux ondes lumineuses. En fonction de l'atténuation des ondes acoustiques dans le solide, le faisceau peut éventuellement être focalisé à l'intérieur du matériau à une profondeur de plusieurs longueurs d'onde [39]. Lorsque le faisceau acoustique se focalise à une profondeur donnée dans l'échantillon (Figure 3.2 (b)), l'onde réfléchie suit le même chemin que l'onde incidente avant d'être acquise par le transducteur piézoélectrique. Le traitement du signal permet alors de ne sélectionner que les ondes s'étant propagées durant un temps donné correspondant à la profondeur choisie [40].

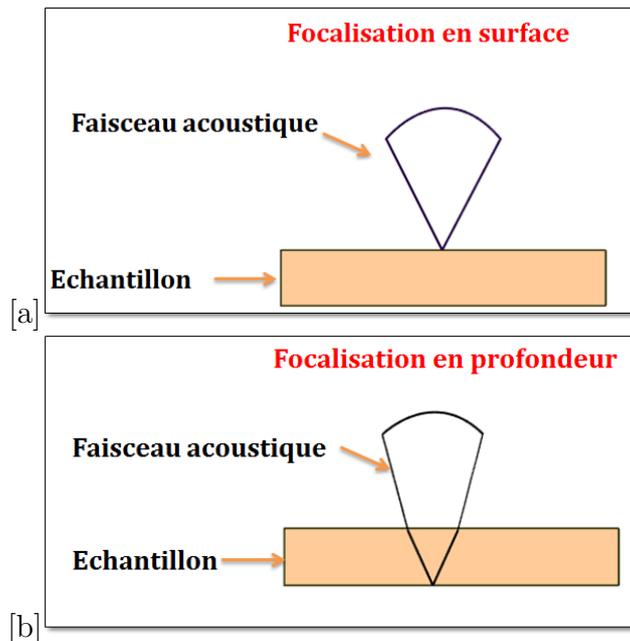


Figure 3.2 – Imagerie de surface (a). Imagerie en profondeur (b).

3.1.4 Acquisition - Visualisation de l'image

Acquisition

Pour la construction d'une image 2D, l'acquisition des signaux est réalisée de la manière suivante : Après réglages, pour une position Z (Figure 3.3) verticale fixe du capteur (Figure 3.3), le microscope acquiert m signaux sur la circonférence de la gaine (Figure 3.4). Après le stockage des données brutes, le moteur en X est incrémenté et une nouvelle rotation est effectuée.

Une matrice $n \times m$ de signaux est alors obtenue, où n correspond aux points suivant l'axe (X) de déplacement du capteur et m aux points suivant l'axe (Θ) de rotation de la gaine.

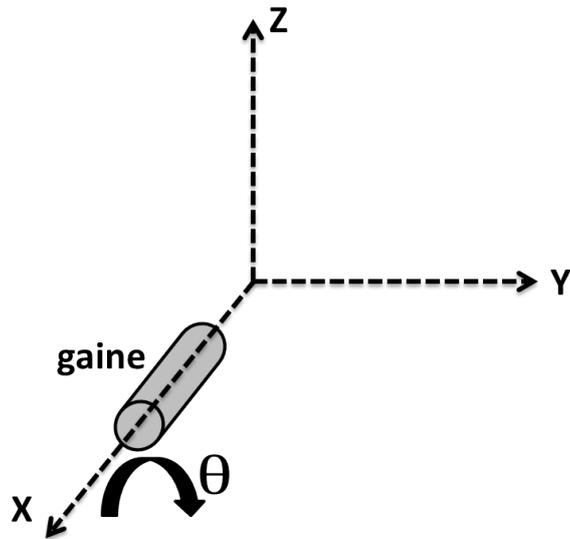


Figure 3.3 – Représentation des axes X, Y, Z et Θ .

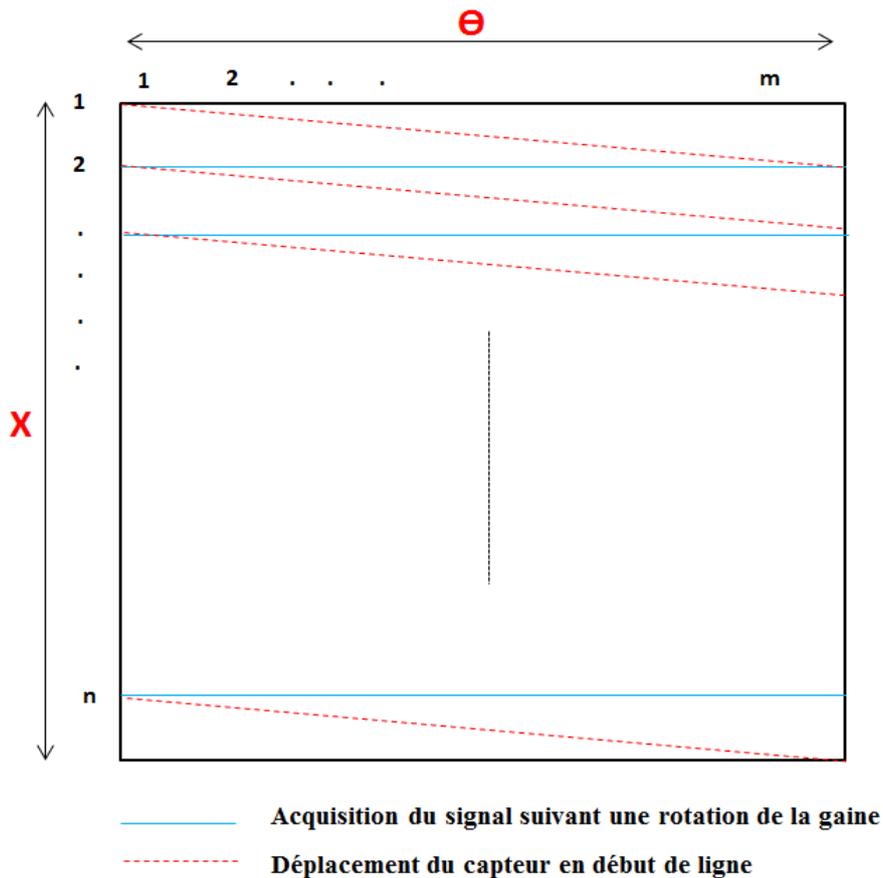


Figure 3.4 – Représentation de l’affichage d’une image relativement à l’acquisition de données circconférentielles.

Ces données brutes sont traitées afin d’extraire une valeur pertinente de chaque signal pour chaque point d’acquisition. Une image de $n \times m$ peut être visualisée et étudiée en post-traitement. En fonction de la résolution spatiale désirée et de la profondeur sondée,

la dimension de l'image, le nombre de points en X et en Θ , la fréquence d'échantillonnage et le nombre de points temporels doivent être adaptés.

L'image est visualisée sur écran d'ordinateur, après un premier traitement de signal standard des échos acoustiques. Pour assurer un post traitement, un stockage des données brutes est réalisé. Chaque point de l'image, situé dans un plan (X, Θ) ¹ est fonction de l'énergie acoustique réfléchi. Les contrastes contenus dans les images sont liés à des variations locales des propriétés mécaniques de l'échantillon.

Traitement

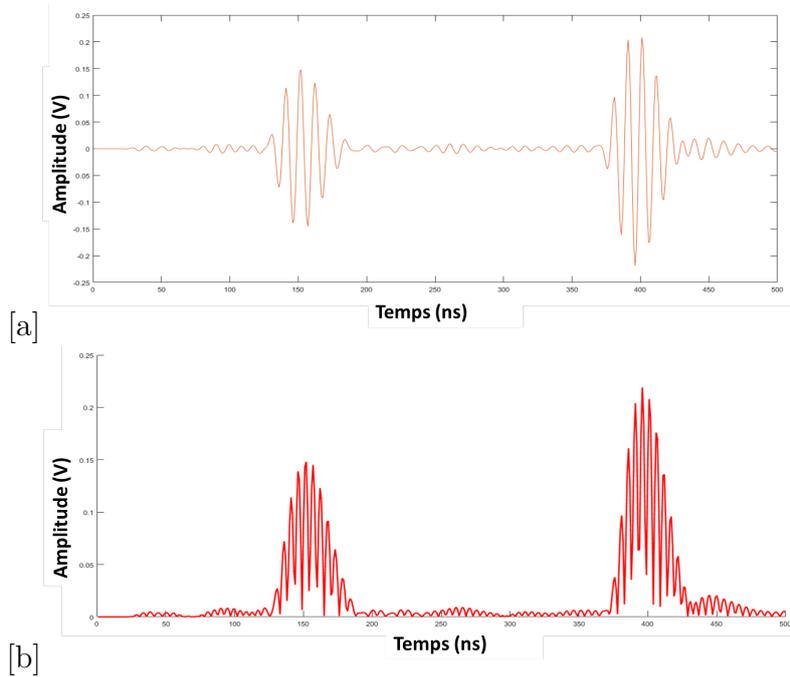


Figure 3.5 – Représentation d'une ligne d'acquisition complète (a). En bas, le signal redressé et filtré correspondant à cette acquisition (b).

L'information d'amplitude est suffisante pour la constitution et la visualisation d'une image 2D. Chaque niveau de gris (X, Θ) sur une image est lié à l'énergie du signal acoustique. Son calcul est basé sur l'expression de la valeur RMS (Root Mean Square) du signal $x_{i=1...l}$ (figure 3.5 (a)) définie par :

$$RMS = \sqrt{\frac{\sum_{x=1}^l x_i^2}{l}}. \quad (3.2)$$

L'image obtenue est composée d'un gradient de niveaux de gris représentant les différents matériaux au sein de l'échantillon. Les ultrasons qui traversent l'échantillon sont plus ou moins absorbés en fonction de la densité des matériaux rencontrés. En présence d'un changement de contact à la face interne de la gaine, l'absorption des ultrasons par ces zones sera supérieure ou inférieure à celle d'une même zone sans changement de matière en fonction de la position du transducteur. Dans ce travail, la microscopie acoustique permet

1. Dans tout le reste de manuscrit, X correspond au déplacement horizontal du capteur acoustique et Θ à l'angle de rotation de la gaine

donc de qualifier l'homogénéité des contacts au niveau des interfaces. Les différences de niveaux de gris observées sur les figures 3.6 (a) et 3.6 (b) (cercles rouges) au niveau de l'échantillon représentent donc une hétérogénéité de matériaux en profondeur d'un échantillon ou la présence de rayures par exemple (problème lié à l'état de la surface).

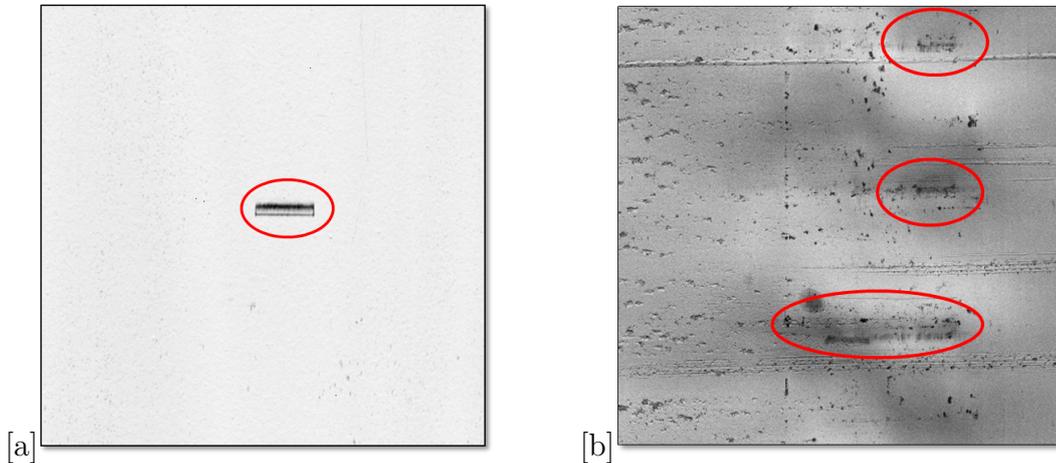


Figure 3.6 – Image ultrasonore d'un tube en Zy-4 en surface (a) et en profondeur (b) utilisée comme exemple dans cette partie.

Notion de contraste

Dans son emploi usuel, le contraste d'une zone de l'image par rapport à une autre zone désigne la variation ou différence d'intensité entre ces deux zones. La figure 3.7 illustre les différences de signal observées sur un échantillon d'épaisseur d en présence d'autres matériaux sur l'interface visualisée en profondeur. Les niveaux de gris sont rendus en fonction de l'intensité de l'écho. Lorsqu'une onde passe d'un milieu à un autre, une partie de l'énergie incidente est transmise et l'autre est réfléchi au niveau de l'interface séparant ces deux milieux. Dans une image en niveaux de gris, chaque pixel est noir, blanc, ou a un niveau de gris intermédiaire.

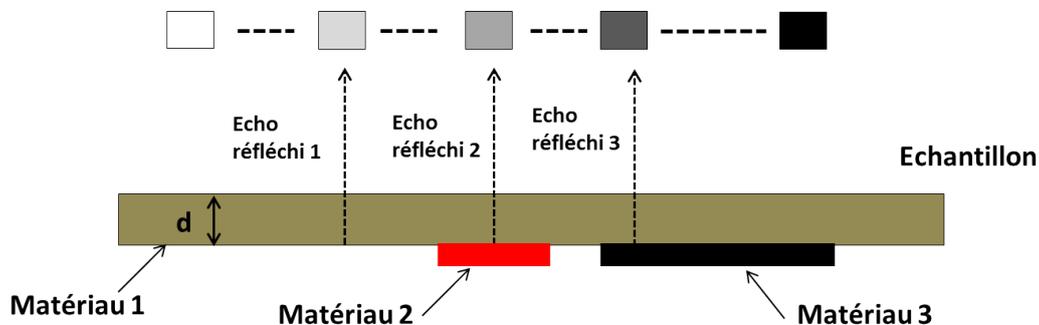


Figure 3.7 – Représentation d'un signal réfléchi au niveau des différentes interfaces présentes dans un échantillon d'une épaisseur d .

Le contraste dépend de plusieurs paramètres comme la structure du matériau traversé et l'atténuation des ultrasons par les matériaux ainsi que de l'épaisseur. C'est pourquoi il est important de définir précisément ce paramètre car il est porteur de l'information du

contrôle.

Un changement de contact au niveau d'une interface contribuera à l'atténuation de la transmission des ultrasons que son environnement et sera donc observable par une différence de contraste sur l'image finale obtenue. Cela permet alors d'obtenir une cartographie complète de l'état des interfaces de l'intégralité d'un échantillon. Observons sur la figure 3.9 le signal en niveau de gris d'une interface réelle mesuré sur une ligne L de l'image ultrasonore (figure 3.8) visualisé sur une échelle de gris variant du noir au blanc. La zone claire de la ligne L représente une réflexion intégrale du signal acquis ce qui est interprété par des valeurs de niveau de gris importantes sur le profil de la figure 3.9, alors que la zone sombre sur la ligne L représente une variation de contact sur l'interface conduisant à des valeurs de niveau de gris faibles.

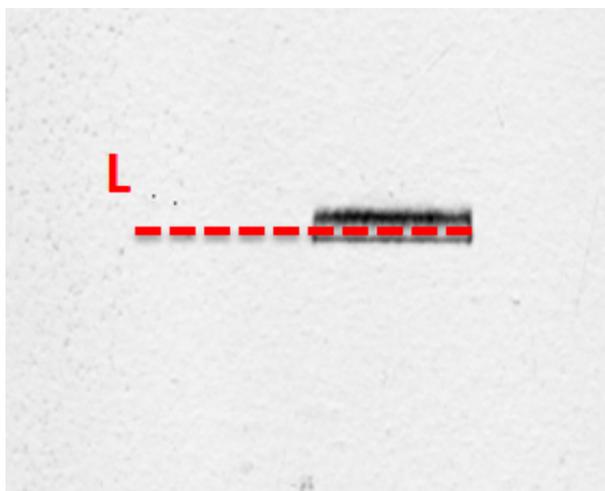


Figure 3.8 – Image ultrasonore montrant la variation de contraste en fonction des objets visualisés sur l'interface.

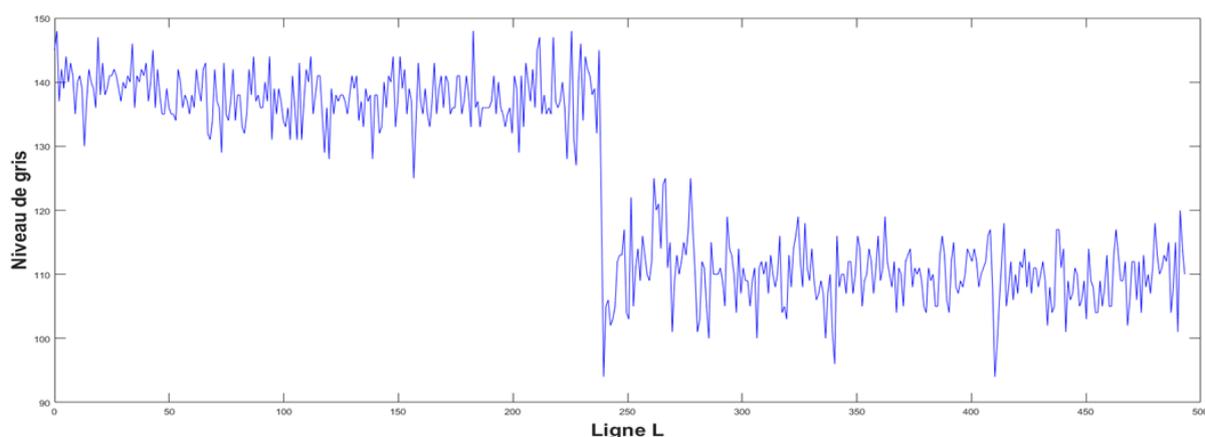


Figure 3.9 – Profil de niveau de gris d'une interface qui comporte deux matériaux différents suivant une ligne L de l'image ultrasonore.

L'utilisation d'ultrasons permet une observation non destructive à travers l'échantillon directement, contrairement à la microscopie optique qui donne une information sur la surface extérieure seulement.

Après avoir présenté les différentes parties qui constituent le microscope acoustique dédié

à l'imagerie cylindrique, nous allons présenter dans le reste de ce chapitre les résultats obtenus par ce système.

3.2 Résultats obtenus par le prototype ultrasonore

Les premières manipulations réalisées à partir du dispositif ultrasonore ont porté sur le développement des fonctions du système permettant les acquisitions ponctuelle, linéaire et circulaire de signaux visant à termes à l'obtention de l'image 2D en (X, Θ) .

3.2.1 Premières acquisitions ultrasonores

La présente section expose les résultats obtenus au cours des premières expériences réalisées sur une gaine neuve en Zircaloy-4 d'une longueur de 50 cm et d'un diamètre de 9.5 mm (Figure 3.10).



Figure 3.10 – Image d'une gaine vierge en Zircaloy-4.

Acquisition ponctuelle (A-SCAN)

En statique, i.e. en un seul point de l'espace (X, Θ) , les premiers essais montrent que les échos de la face externe et interne de la gaine sont parfaitement séparés, et d'amplitudes comparables. Ce type de mesures ponctuelles est nommé A-Scan. La figure 3.11 (a) et 3.11 (b) présentent le signal acoustique acquis par le système lorsque le point de focalisation du capteur est positionné à l'intérieur de la gaine de manière à visualiser simultanément l'écho de surface et l'écho de l'interface.

Acquisition linéique/circonférentielle (B-SCAN)

Un enregistrement avec codage de l'amplitude du signal acoustique permet de tracer des échogrammes sous la forme d'une visualisation dite B-Scan. Le déplacement axial du capteur donne lieu à un échogramme 2D classique représenté sur la figure 3.12 (a) où le temps est représenté selon l'axe vertical et la position le long de la génératrice selon l'axe horizontal. Une rotation du tube permet de façon similaire de délivrer des signaux acoustiques (figure 3.13) et de tracer un échogramme 2D polaire (Figure 3.12 (b)).

Ce type d'acquisition permet d'obtenir des informations relatives à la variation de diamètre de la gaine lors d'un tour complet ou d'une déformation sur une génératrice. Les figures 3.12 (a) et 3.12 (b) montrent un exemple d'acquisition sur une gaine en Zircaloy-4. La figure 3.12 (a) montre que le tube de gainage présente un profil irrégulier potentiellement dû à des défauts et des variations de diamètres. Sur la figure 3.12 (b), nous observons plusieurs cercles moins clairs que les deux cercles des face externe et interne et le cercle de repère, qui permettent la compréhension du centrage de la gaine. Ces cercles sont liés aux parasites du capteur et ne représentent pas des interfaces à l'intérieur de la gaine. Les variations visualisées sur ces figures et le mauvais positionnement des différents cercles par

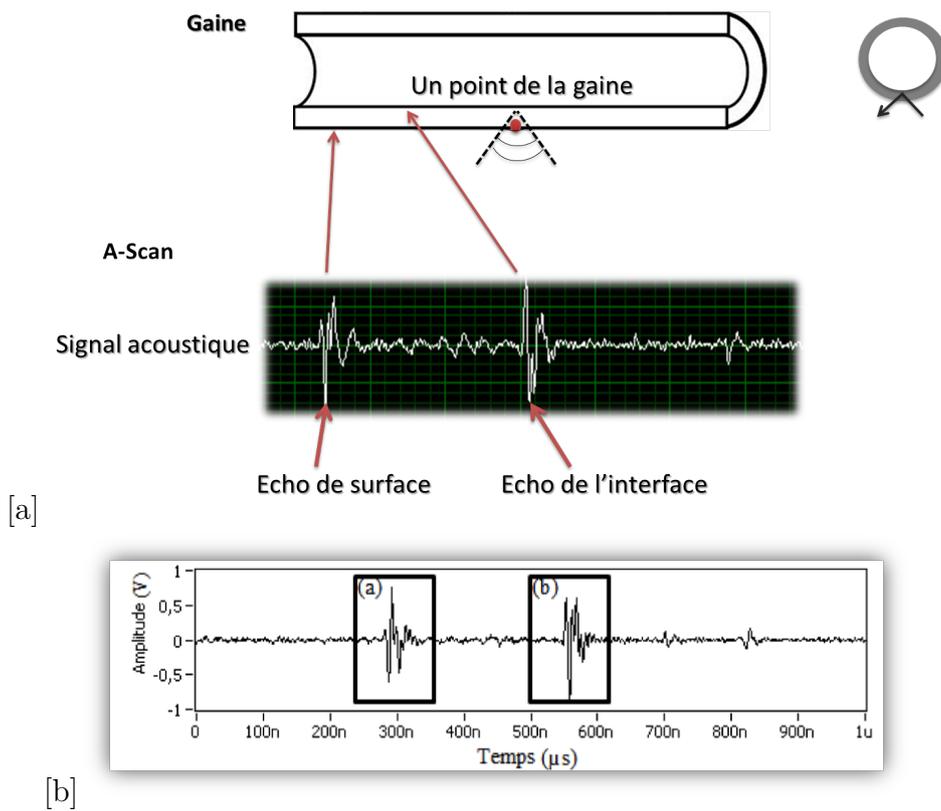


Figure 3.11 – Signal acquis par le capteur. (a) Echo de la face externe ; (b) Echo de l'interface d'une gaine Zircaloy-4 vierge.

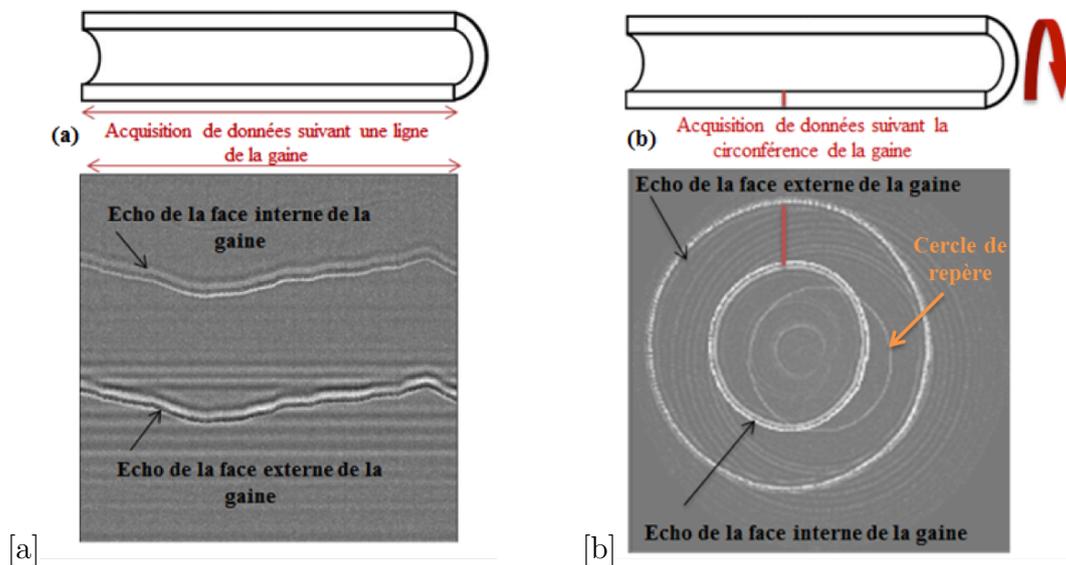


Figure 3.12 – Acquisition d'échos sur (a) une génératrice, (b) une rotation complète.

rapport au cercle de repère montrent qu'il y a un problème de centrage de la gaine et la présence de quelques contraintes lors de l'acquisition des données. Cela influence la distance entre le capteur et la face externe de la gaine qui doit rester stable pour ne pas perdre au niveau de la résolution. Nous ne présentons dans ce manuscrit que la version finale de la tête de mesure obtenue après optimisation mécanique. Cependant, nous ouvrons une parenthèse pour montrer brièvement comment elle a été optimisée.

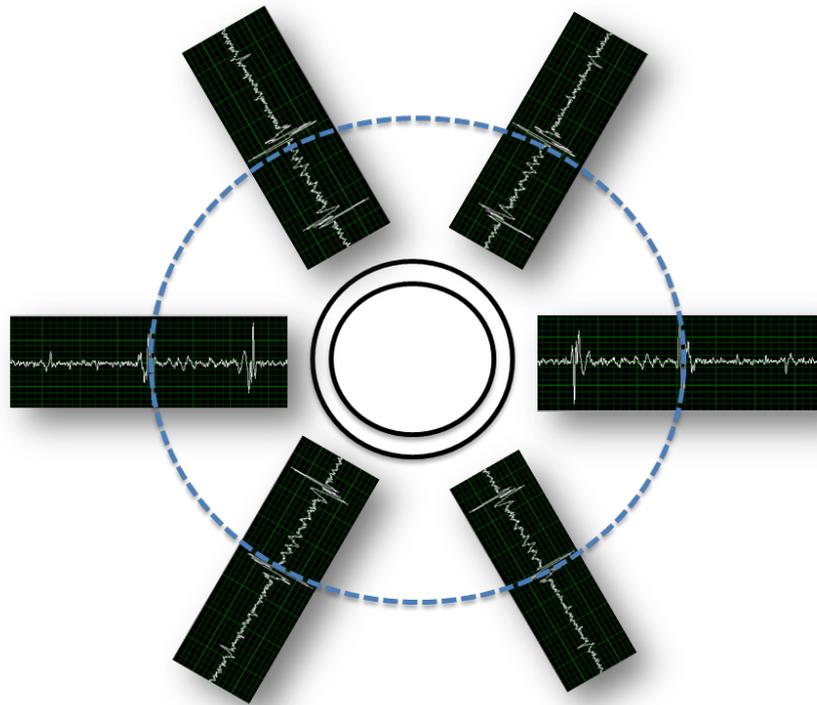


Figure 3.13 – Représentation polaire du signal acquis par le transducteur ultrasonore.

Analyse et discussion

Après avoir réalisé les premières acquisitions acoustiques de la face externe et interne de la gaine, il s'est avéré nécessaire de compenser les variations de distance entre le capteur et le tube de gainage, remarquées durant l'acquisition, pour assurer une résolution constante sur toute une circonférence du tube. Pour cela, une étape expérimentale très importante est nécessaire pour régler le positionnement de la gaine dans le banc mécanique. Si le tube est mal ajusté entre les deux plaques verticales représentées sur la figure ?? ou s'il y a une forte variation du diamètre de la face externe de la gaine, la position de l'interface peut varier de telle manière qu'elle sorte de la tâche focale, dégradant ainsi la résolution latérale ou déformant l'image. La figure 3.14 montre la variation de la position de l'écho réfléchi au niveau de la surface de la gaine en fonction de la distance entre cette dernière et le capteur.

Il a été mis en évidence que les contraintes mécaniques imposées par les deux piliers du système sur le tube, conduisent à une déformation impactant la distance entre le capteur et la gaine.

Cela montre l'intérêt de développer une tête de mesure qui :

- ne déforme pas le tube lors de son analyse,
- asservit la position du capteur par rapport à la surface de la gaine, avec une tolérance imposée par la dimension de la tâche focale du capteur.

Afin d'optimiser le système, il était donc nécessaire de disposer d'un tube calibré permettant de corriger d'éventuels défauts mécaniques d'alignements et d'étalonner ainsi le banc mécanique du dispositif ultrasonore.

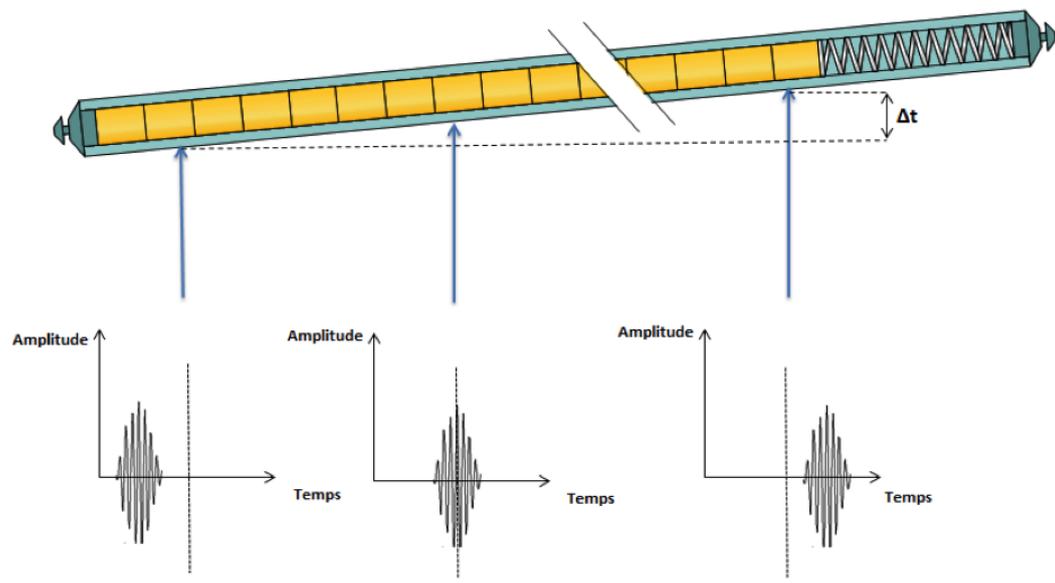


Figure 3.14 – Erreur sur la focalisation du capteur ultrasonore.

Table 3.1 – Dimensions d’une gaine calibrée par EDF

Valeur moyenne (mm)	Ecart type (μm)	
Le diamètre d’une gaine neuve	9.500	± 3
L’épaisseur d’une gaine neuve	0.578	± 4

Expérience sur un tube de gainage calibré

Un tube de gainage calibré en Zy-4 a été caractérisé par le Laboratoire Combustible d’EDF R&D. Sur ce tube, comme indiqué dans le tableau 3.1, le diamètre ne varie au plus que de $6 \mu\text{m}$ et l’épaisseur de la gaine de $8 \mu\text{m}$. Plusieurs tests d’acquisition ultrasonore sur ce tube indiquent une variation de la position de la zone focale par rapport à la face interne de la gaine supérieure à $\pm 40 \mu\text{m}$. En effet, la figure 3.15 démontre qu’un tel écart est acceptable par le dispositif ultrasonore car cela ne conduit pas à une variation significative sur l’amplitude de l’écho de la face interne de la gaine sur une distance de $\pm 50 \mu\text{m}$.

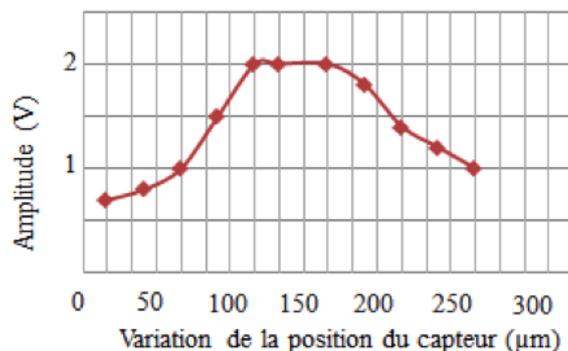


Figure 3.15 – Amplitude de l’écho de la face interne de la gaine suivant la variation du point focal du capteur sur une distance de $270 \mu\text{m}$

3.2.2 Imagerie par le prototype ultrasonore sur gaines

Après avoir présenté la tête de mesure conçue et réalisée pour l'imagerie en profondeur de la face interne de la gaine, la section suivante montre les images ultrasonores des gaines en Zircaloy-4 obtenues par ce système pour vérifier sa capacité à détecter des résolutions de quelques dizaines de microns en profondeur.

Imagerie acoustique de gaine vierge

Des acquisitions bidimensionnelles permettent la reconstruction d'images 2D de la face externe et de la face interne d'une gaine vierge en Zircaloy-4, en choisissant de représenter en niveaux de gris l'énergie de l'écho adéquat.

La figure 3.16 représente des images ultrasonores d'une gaine vierge en Zircaloy-4. Le contraste des niveaux de gris visualisé sur ces images correspondantes à chaque face de la gaine est stable, ce qui prouve que l'asservissement mécanique joue bien son rôle. L'énergie ultrasonore est intégralement réfléchi sur l'interface métal/air.

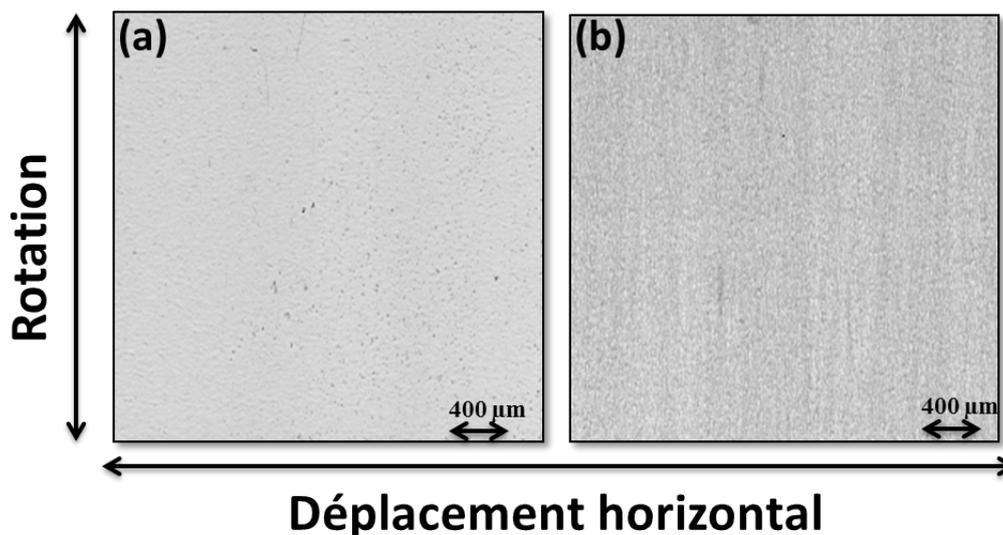


Figure 3.16 – Image de (a) la face externe et (b) la face interne d'une gaine vierge acquise par le prototype ultrasonore optimisé.

Le prochain paragraphe présente les tests réalisés pour vérifier les résolutions latérales détectées par le microscope acoustique.

Imagerie acoustique de gaine partiellement remplie

Dans une première approche, des billes de verre sont introduites dans la colle pour pouvoir caractériser la résolution latérale dans une géométrie cylindrique. Une partie de la face interne d'une gaine a été chargée de façon non uniforme par ce mélange de colle et de billes de verre de $60 \pm 15 \mu\text{m}$ de diamètre. L'image acoustique correspondante est présentée sur la figure 3.17.

La partie la plus sombre de la figure 3.17 correspond à des zones où la colle a été déposée. Lors de la réflexion, l'énergie ultrasonore est transmise dans cette couche absorbante

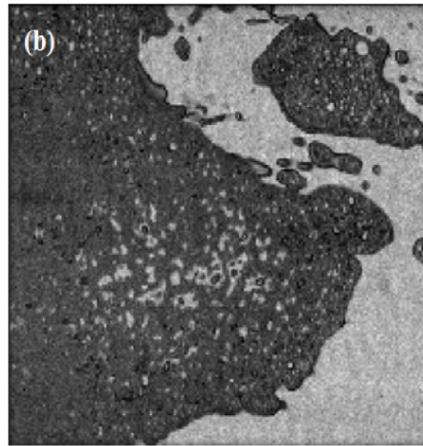


Figure 3.17 – Images de la face interne de la gaine contenant un mélange de colle et de billes de $60 \pm 15 \mu\text{m}$.

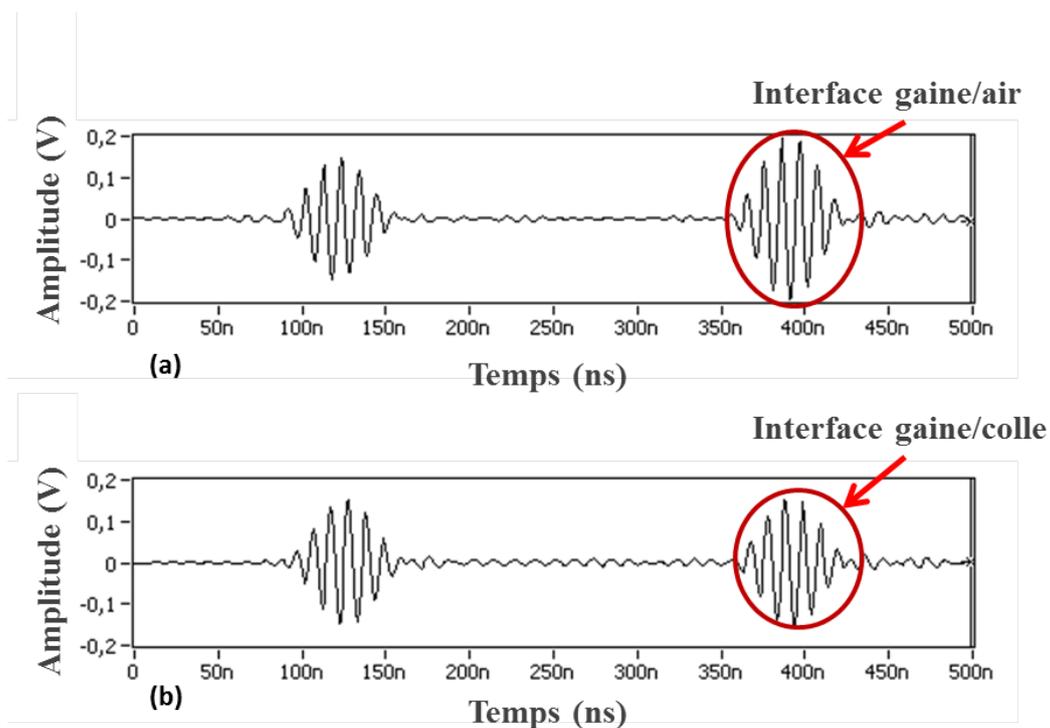


Figure 3.18 – Amplitude de l'écho au niveau de l'interface métal/air et métal/colle.

conduisant à un coefficient de réflexion plus faible, d'où l'obtention d'un signal acoustique avec une amplitude faible (Figure 3.18 (b)). Sur la partie claire de l'image, le coefficient de réflexion et l'amplitude du signal acoustique sont plus importants car l'énergie ultrasonore est intégralement réfléchi sur l'interface métal/air. En plus, la présence des points noirs sur l'image représente le contact entre les billes de verre de $60 \pm 15 \mu\text{m}$ et la face interne de la gaine.

À ce stade, ces résultats démontrent clairement la capacité du microscope à détecter des variations de qualité d'interface à l'intérieur d'une gaine. De plus, cette expérience montre que si la gaine présente une zone d'interface rugueuse à la même échelle, le dispositif devrait visualiser avec la résolution latérale souhaitée.

Ces conclusions sont vraies pour les matériaux choisis dans cette étude, à savoir la colle

et les billes de verre. Les coefficients de réflexion de ces matériaux par rapport à nos cas réels sont présentés dans la figure 3.19 :

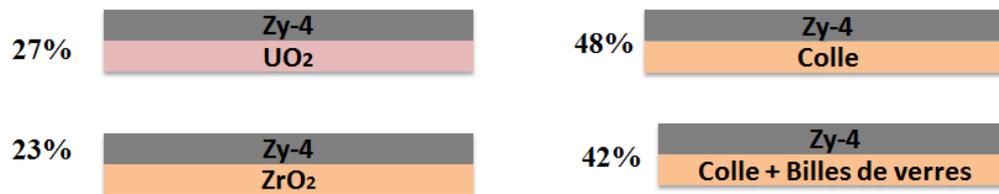


Figure 3.19 – Coefficients de réflexion des interfaces dans 4 cas différents.

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté le microscope acoustique adapté à l'imagerie d'un objet cylindrique. La tête de mesure développée permet de maintenir constante la distance entre le transducteur ultrasonore et la face externe du tube de gainage, grâce à un asservissement mécanique, pour ne pas perdre le point focal et donc la résolution latérale. Nous avons par la suite montré les premières images de surface et en profondeur de la gaine. En fin du chapitre, des images ultrasonores montrant la capacité du système à détecter des changements d'interface avec des résolutions latérales en profondeur meilleures que 40 μm ont été présentées. Durant le chapitre 2, le choix du transducteur ultrasonore choisi pour ce travail avait été validé. Ce troisième chapitre nous a permis également de valider le choix du couple {transducteur ultrasonore, prototype du banc mécanique}. Dans le prochain chapitre, nous allons passer à l'imagerie des gaines présentant ou non différentes couches de zirconium pour se rapprocher des cas réels d'imagerie sur les différentes catégories de contacts au niveau de la face interne de la gaine.

IV

Simulation expérimentale et imagerie ultrasonore des 4 catégories de la face interne des tubes de gainage

Sommaire

4.1	Introduction	82
4.2	Imagerie ultrasonore sur tubes de gainage	82
4.3	Simulation expérimentale des catégories I et II : imagerie de gaines oxydées en externe et en interne	84
4.3.1	Oxydation de faible épaisseur	84
4.3.2	Oxydation forte épaisseur	86
4.4	Simulation expérimentale des catégories III et IV : imagerie de gaine avec un contact	88
4.4.1	Réalisation d'un démonstrateur simulant les états de la face interne de la gaine	88
4.4.2	Imagerie acoustique du démonstrateur avec un contact	90
4.4.3	Visualisation des images ultrasonores avec une échelle fixe et normalisée	91
4.5	Imagerie acoustiques des gaines avec un contact à la face interne après normalisation	92
4.6	Représentation des résultats sous forme d'histogrammes	96
4.7	Modélisation du système multicouche	99
4.8	Représentativité des échantillons	102
4.8.1	Premières images de la face interne des échantillons fabriqués	103
4.9	Conclusion	104

4.1 Introduction

Dans ce quatrième chapitre, nous présenterons les résultats obtenus par le microscope acoustique haute fréquence dédié à l'imagerie en profondeur de cylindres. Dans un premier temps, les images ultrasonores des différents types de gaines en Zy-4 ou M5 seront présentées. Par la suite, pour pouvoir faire une comparaison en absolu entre les différentes images obtenues, nous décrirons un démonstrateur réalisé pour avoir une échelle de visualisation fixe permettant de classer les différentes catégories d'interfaces.

4.2 Imagerie ultrasonore sur tubes de gainage

Comme nous l'avons expliqué dans le premier chapitre, il y a quatre catégories d'interface pastille-gaine du crayon qui nous intéressent dans cette étude, ils sont rappelés dans la figure 4.1 :

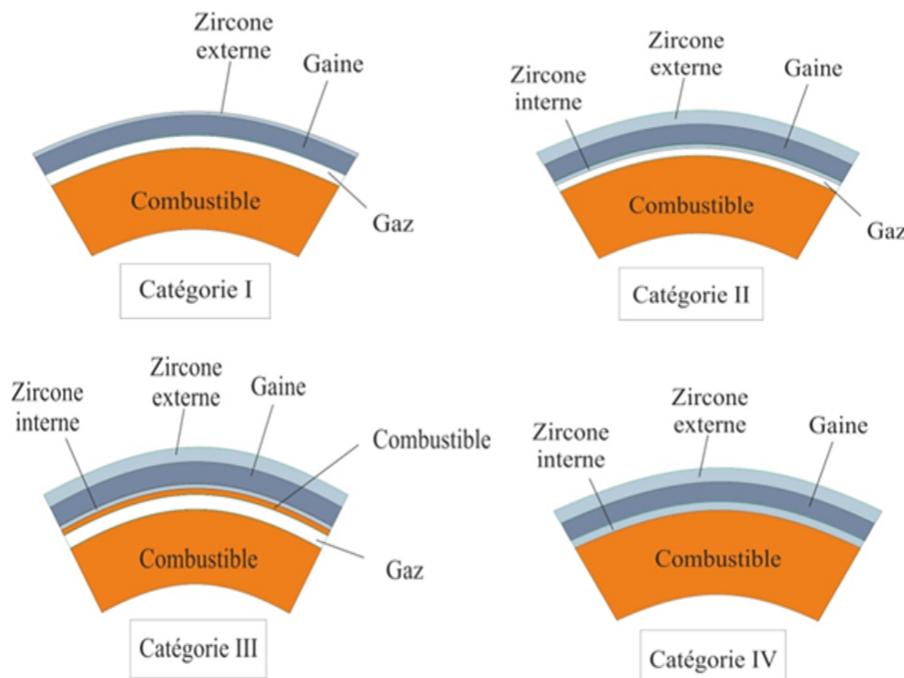


Figure 4.1 – *Etat de l'interface pastille-gaine.*

L'objectif du chapitre 3 était de présenter le microscope acoustique dédié à l'imagerie en profondeur et de valider son fonctionnement sur des tubes de gainage, c'est pourquoi nos expériences précédentes ont été réalisées seulement sur des gaines vierges ne comportant aucune couche de zirconium sur leurs deux faces externe et interne.

Le tableau 4.1 présente les différentes gaines utilisées dans les expériences réalisées au cours de ce chapitre pour la caractérisation des états d'interfaces des gaines.

Table 4.1 – Type de gaines utilisées en fonction des couches de zirconie et de la nature de l'interface à l'intérieur de la gaine

Catégorie d'interface	Nomenclature de l'échantillon	Matériau de la gaine	Epaisseur de la zirconie externe	Epaisseur de la zirconie interne	Présence de la colle à la face interne de la gaine	Longueur en cm	Diamètre en mm
0	A	Zy-4	0	0	Non	50	≈ 9,5
0	B	Zy-4	0	0	Oui	50	≈ 9,5
0	C	M5	0	0	Oui	25	≈ 9,5
0	D	Zy-4	10 μm	0	Oui	20	≈ 9,5
0	E	Zy-4	10 - 73 μm	10 - 73 μm	Non	20	≈ 9,5
0	F'	Zy-4	30 μm	30 μm	Oui	20	≈ 9,5
0	F	Zy-4	66 μm	66 μm	Oui	20	≈ 9,5
I	G	Zy-4	10 μm	0	Non	20	≈ 9,5
II	H	Zy-4	10 μm	10 μm	Non	20	≈ 9,5
II	J	Zy-4	6 - 30 μm	6 - 30 μm	Non	20	≈ 9,5
III et IV	K	Zy-4	10 μm	10 μm	Oui	20	≈ 9,5

Les gaines présentées dans le tableau sont classées par catégorie d'interface. Cependant, la catégorie "0" ne représente pas un cas réel d'interface du crayon combustible, elle est ajoutée tout simplement pour avoir des interfaces références aidant dans l'étude des 4 catégories I, II, III et IV.

La zirconite externe est différente de la zirconite interne, elle est poreuse et celle interne est dense, les structures cristallographiques sont également différentes [35] et [36].

La zirconite interne qui a été créée sur ces tubes par autoclave, n'est pas représentative de la zirconite interne réelle. À l'heure actuelle, il n'y a pas une méthode qui permet de reproduire la même zirconite, en terme de porosité et de structure, qui se développe dans le crayon au cours de l'irradiation en base.

4.3 Simulation expérimentale des catégories I et II : imagerie de gaines oxydées en externe et en interne

4.3.1 Oxydation de faible épaisseur

Dans le but de simuler les conditions expérimentales représentatives des catégories I et II de la figure 4.1, des tronçons déjà oxydés au CEA ont donc été utilisés (gaines *H* et *G* du tableau 4.1, car L'obtention d'une zirconite externe de qualité similaire à celle produite en réacteur peut être longue. La figure 4.2 montre les images acoustiques obtenues sur une gaine de type *G* représentant la catégorie I (figure 4.2 (c)).

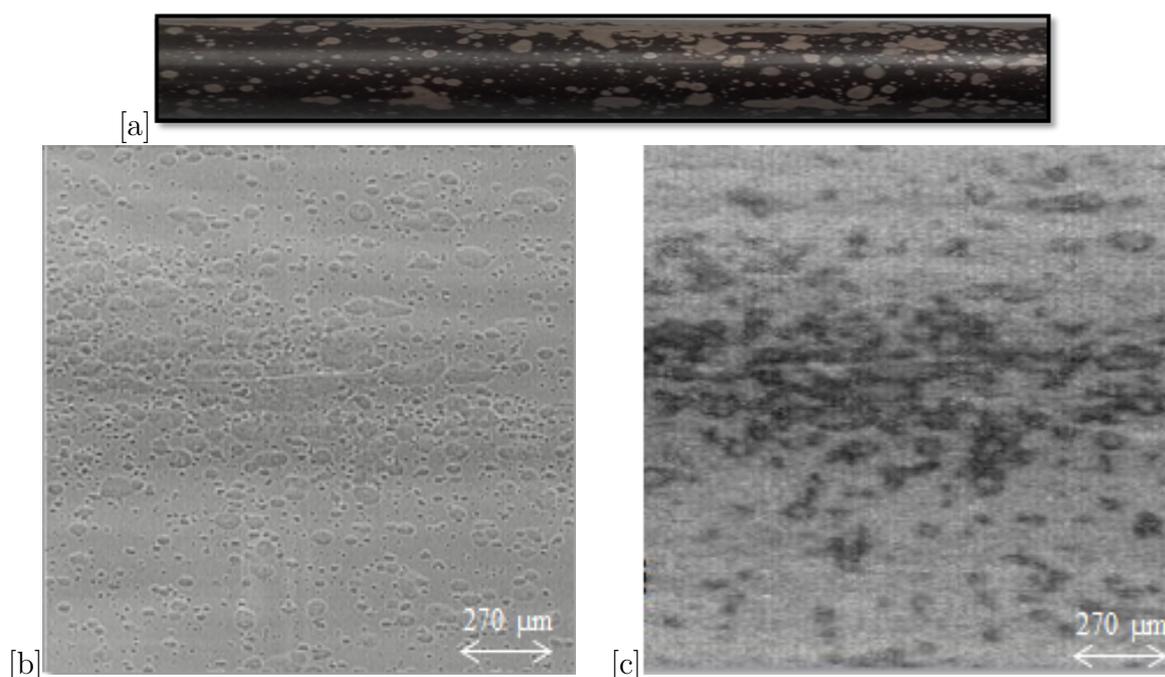


Figure 4.2 – Image (a) optique et acoustiques de la face externe (b) et interne (c) d'une gaine en Zy-4 avec 10 µm de zirconite externe. La gaine est de type *G* du tableau 4.1 représentant la catégorie I.

La figure 4.3 montre les images acoustiques obtenues sur une gaine de type *H* représentant une interface de la catégorie II (figure 4.3 (c)).

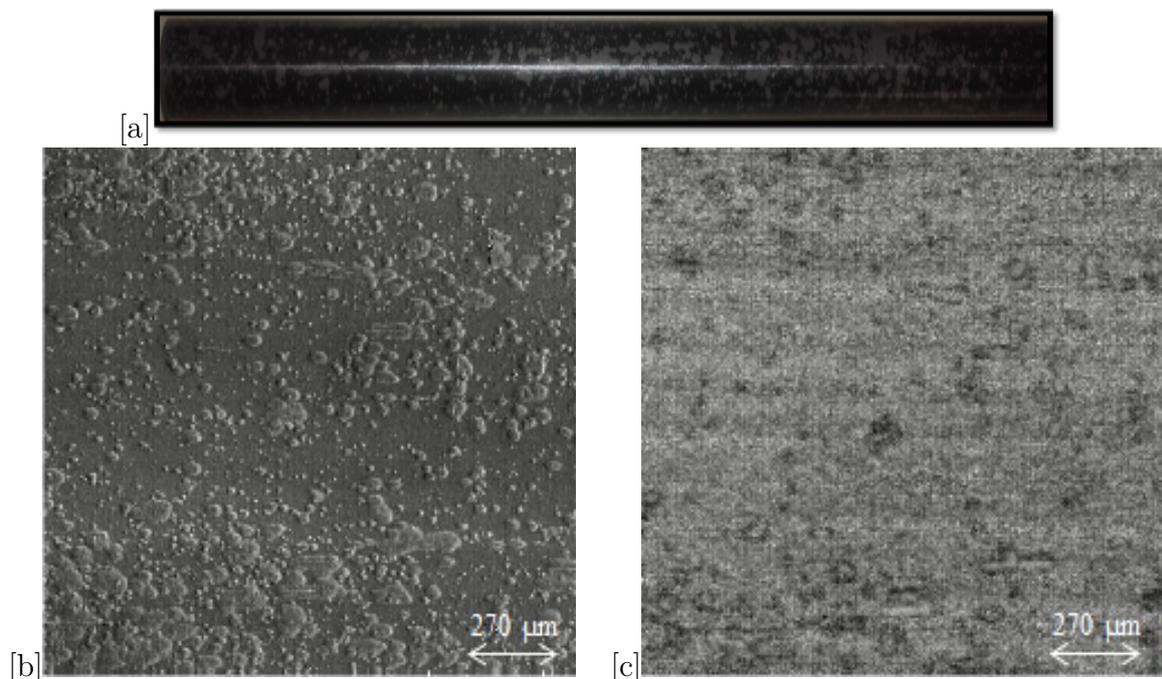


Figure 4.3 – Image (a) optique et acoustiques de la face externe (b) et interne (c) d’une gaine en Zy-4 avec 10 μm de zircon externe et interne. La gaine est de type *H* du tableau 4.1 représentant la catégorie I.

Les contrastes observés sur les images acoustiques des figures 4.2 et 4.3 des gaines avec une couche de zircon externe et/ou interne montrent la sensibilité du système aux faibles variations présentes sur les faces de la gaine dans l’absence d’un matériau simulant le combustible. Ils sont obtenus après optimisation des contrastes afin de faire ressortir la microstructure des surfaces étudiées et pouvoir visualiser les interfaces correspondantes aux catégories I et II. A titre d’exemple, ces images correspondent à des variations d’amplitudes du signal de moins de 2%. Si un contact vient maintenant modifier la réflexion des signaux acoustiques aux interfaces, les images seront fortement modifiées et les contrastes ici observés seront négligeables devant la nouvelle dynamique.

Dans les conditions expérimentales réelles, l’épaisseur de la couche de zircon externe peut atteindre 100 μm . Nous allons par la suite imager la face interne des gaines avec des épaisseurs de zircon importantes pour voir s’il y a un impact ou non d’une grande couche car : à quelques microns de zircon, la tâche focale est plus grande que la couche et l’influence de cette dernière peut être faible. Cependant, lorsque l’épaisseur de la couche de zircon est de l’ordre de grandeur ou supérieure à la dimension de la zone focale, des phénomènes de résonance peuvent apparaître impactant sensiblement les transferts d’énergies. Pour en étudier l’effet , une autre série d’éprouvettes a été réalisée en intégrant un gradient important d’oxyde interne et externe.

4.3.2 Oxydation forte épaisseur

Un protocole d'oxydation rapide qui ne déforme pas la gaine et pour lequel l'épaisseur d'oxyde est assez homogène circonférentiellement a été défini par le CEA.

Les images de la figure 4.4 présentent les résultats obtenus sur une gaine de type *J* dont les épaisseurs de zircon externe et interne varient entre 6 μm et 30 μm . Les contrastes sur ces images sont optimisés permettant ainsi de voir les faibles variations présentes sur les faces de la gaine dans l'absence d'un matériau simulant le combustible. Du fait de la faible épaisseur de zircon interne, ce type de gaine peut être représentative de la catégorie II.

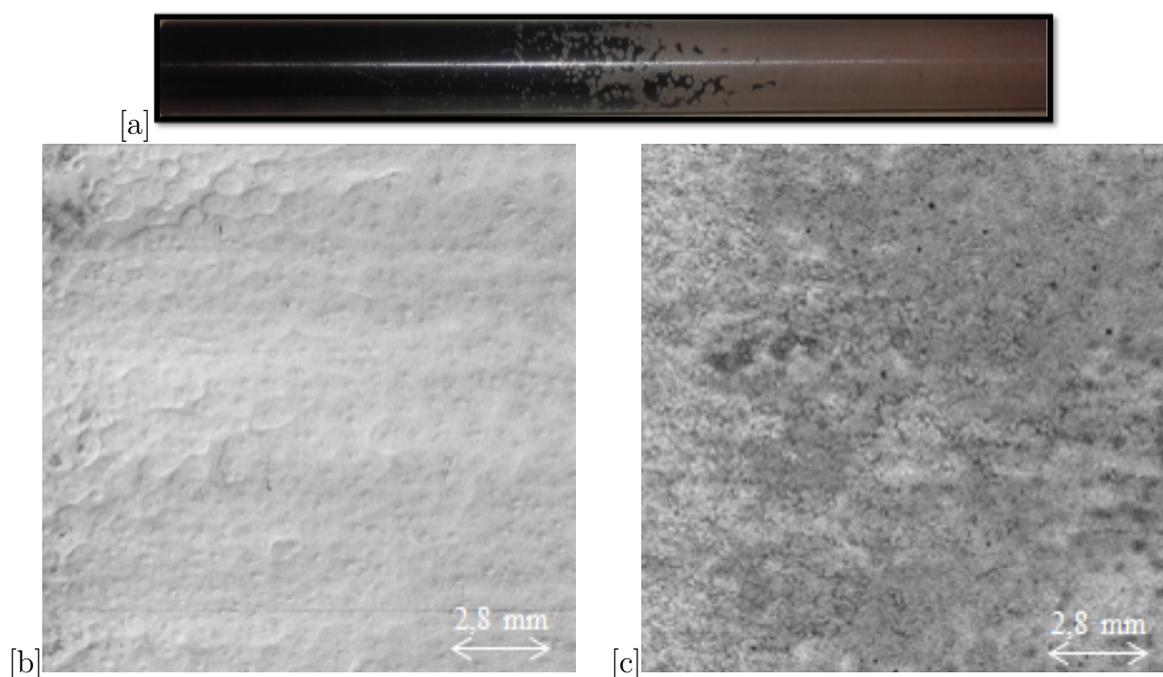


Figure 4.4 – Image (a) optique et acoustiques de la face externe ((b) et (d)) et interne ((c) et (e)) d'une gaine Zy4 avec une couche de zircon externe et interne entre 6 et 32 μm ((b) et (c)), et entre 10 et 73 μm ((a), (d) et (e)).

Les images de la figure 4.5 présentent les premiers résultats obtenus sur une gaine de type *E* dont les épaisseurs de zircon externe et interne varient entre 10 μm et 73 μm . Cette gaine ne représente pas un cas réel d'interface qui peut exister dans le réacteur nucléaire REP car l'épaisseur de la zircon interne est forte. Cependant, les mesures acoustiques sur ce type de gaine permettent de comprendre l'effet d'une forte épaisseur de zircon externe et/ou interne sur les images de la face interne de la gaine du crayon.

La figure 4.5 (c) montre que plus l'épaisseur de la couche de zircon est importante plus l'hétérogénéité de la surface est élevée, conduisant à des contrastes optimisés plus forts. A titre d'exemple, la figure 4.6 représente l'amplitude du signal acoustique pour différents cas d'épaisseurs de zircon. Les échos réfléchis au niveau de la face interne de deux gaines de type *J* et *E* sont représentés sur la figure 4.6. L'amplitude du signal acoustique est importante pour une épaisseur de zircon externe et interne de 10 μm (figure 4.6 (a)), plus l'épaisseur est importante plus l'amplitude du signal diminue (figure 4.6 (b) et 4.6 (c)).

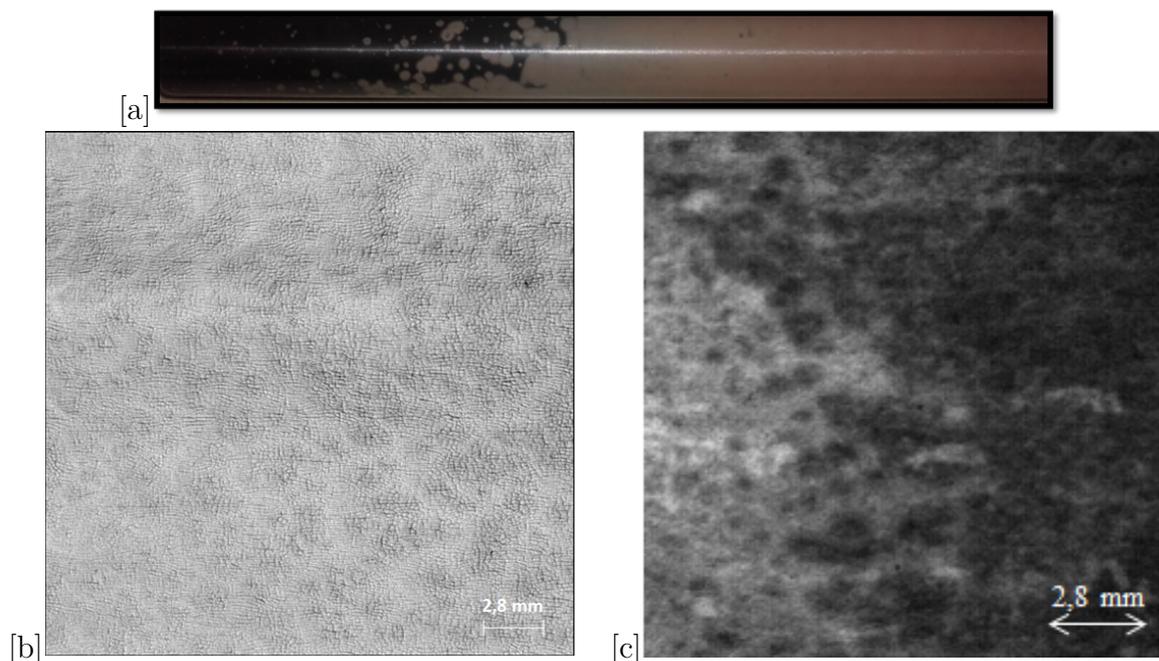


Figure 4.5 – Image (a) optique et acoustiques de la face externe ((b) et (d)) et interne ((c) et (e)) d'une gaine Zy4 avec une couche de zircon externe et interne entre 6 et 32 μm ((b) et (c)), et entre 10 et 73 μm ((a), (d) et (e)).

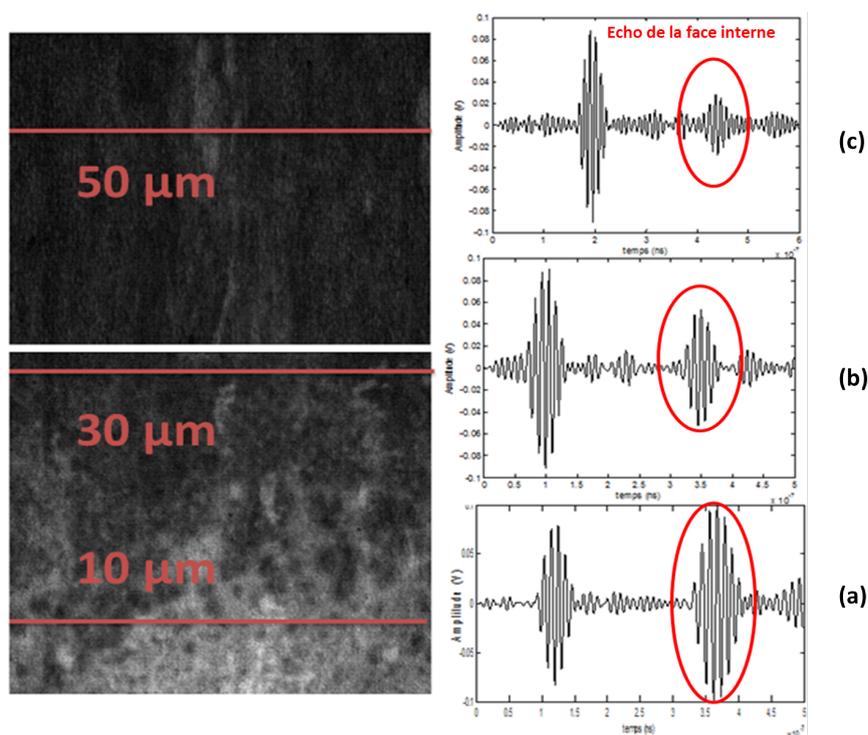


Figure 4.6 – Image de la face interne d'une gaine Zy-4 avec une couche de zircon externe et interne (10-73 μm) (A droite). Les échos réfléchis au niveau de la face interne de la gaine en présence d'une couche de zircon externe et interne d'une épaisseur de (a) 10 μm ; (b) 30 μm ; (c) 50 μm (A gauche).

Discussion

D'après les expériences précédentes qui ont été réalisées pour simuler les catégories I et

Il nous pouvons conclure que :

- les contrastes aperçus sur les images acoustiques des gaines avec une couche de zircon externe et interne montrent la sensibilité du système aux faibles variations présentes sur les faces de la gaine dans l'absence d'un matériau simulant le combustible. Si un contact vient modifier la dynamique des signaux acoustiques, les contrastes seront modifiés et l'effet de la couche de zircon externe sera potentiellement faible.
- il serait important de disposer d'une gaine en Zy-4 avec une couche de zircon sur toute sa surface externe et également avec une couche de zircon interne présente seulement sur une partie de la face interne de la gaine. Ceci permettrait de comprendre l'effet de la zircon interne sur l'intérieur de la gaine et de pouvoir distinguer les catégories I et II facilement.

4.4 Simulation expérimentale des catégories III et IV : imagerie de gaine avec un contact

Les 2 catégories III et IV comportent des couches de zircon externe et interne et une couche de combustible au niveau de la face interne de la gaine. Il avait initialement été prévu qu'un échantillon simulant l'interface Pastille-Gaine dans ces cas soit conçu dans le cadre de cette étude.

Plusieurs essais de réalisation du contact au niveau de la face interne de la gaine ont été faits pour simuler les catégories III et IV. Ils ont montré qu'il faut utiliser un matériau qui vienne se coller sur la face interne de la gaine. Le protocole d'obtention d'un démonstrateur a donc été choisi en prenant en considération la forme tubulaire des échantillons et les conditions de réalisation.

4.4.1 Réalisation d'un démonstrateur simulant les états de la face interne de la gaine

Etant donné le nombre d'échantillons oxydés limité, la réalisation de plusieurs types de contacts à l'intérieur de la gaine nécessite l'utilisation de matériaux pouvant être enlevés sans endommager la face interne de l'échantillon. Ce n'est pas évident de trouver ce type de matériaux et en même temps garantir un contraste qui est proche de celui du cas du combustible UO_2 .

Après la réalisation de plusieurs tests, nous avons choisi la colle (Araldite) pour qu'elle soit mise comme couche interne dans les gaines (Figure 4.7) pour représenter la couche de combustible présente dans les catégories III et IV.

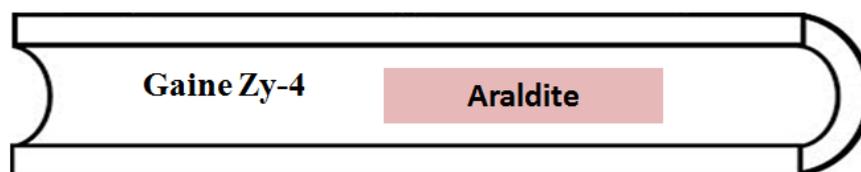


Figure 4.7 – Essais de réalisation du contact au niveau de la face interne de la gaine.

Cela permettra d’avoir le même contact dans quasiment toutes les conditions. Le tableau 4.2 montre les impédances acoustiques des matériaux utilisés et la figure 4.8 représente les coefficients de réflexion pour les cas de contact Zy-4/ UO_2 et Zy-4/Colle.

Table 4.2 – Impédances acoustiques des matériaux

Matériaux	Impédance acoustique (MRay)
Zy-4 [50]	30,9
UO_2 poreux [29]	53,8
Colle [50]	10,2



Figure 4.8 – Coefficients de réflexion pour les cas de contact Zy-4/ UO_2 et Zy-4/Colle.

Par la suite, une zone de contact a été définie sur la face interne de 6 gaines différentes présentées précédemment dans le tableau 4.1.

- Gaine de type B : gaine en Zircaloy-4.
- Gaine de type C : gaine en M5.

Ces 2 gaines n’existent pas en réacteur mais nous estimons qu’il est important de les étudier pour avoir une idée sur le comportement de l’écho de la face interne de la gaine. Cela permettrait d’aider à la compréhension des images acoustiques obtenues en présence de la couche de zircone externe.

L’introduction de la colle sur une partie de la face interne du tube de gainage avec la zircone externe permettrait de voir l’effet de la non homogénéité de la zircone externe sur la colle :

- Gaine de type D : gaine en Zircaloy-4 avec $10 \mu\text{m}$ de ZrO_2 externe.
- Gaine de type K : gaine en Zircaloy-4 avec $10 \mu\text{m}$ de ZrO_2 externe et $10 \mu\text{m}$ de ZrO_2 interne.
- Gaine de type F' : gaine en Zircaloy-4 avec $30 \mu\text{m}$ de ZrO_2 externe et $30 \mu\text{m}$ de ZrO_2 interne.
- Gaine de type F : gaine en Zircaloy-4 avec $66 \mu\text{m}$ de ZrO_2 externe et $66 \mu\text{m}$ de ZrO_2 interne.

Les résultats obtenus de l'imagerie acoustique en profondeur sur ces gaines feront l'objet de la prochaine section.

4.4.2 Imagerie acoustique du démonstrateur avec un contact

Dans une première approche, nous allons utiliser deux gaines sans zircon de type *B* et *C*. L'alliage M5 est utilisé également comme matériau de gainage comme il a été décrit dans le premier chapitre. Ses caractéristiques mécaniques et sa réponse acoustique sont similaires à celle du Zircaloy-4. D'où l'intérêt de comparer les deux images ultrasonores de la face interne de ces deux types de gaines, pour évaluer la sensibilité du microscope acoustique à une modification de l'interface interne de la gaine (la colle dans ce cas).

Les images acoustiques correspondantes à la face interne des gaines *B* et *C* sont présentées sur la figure 4.9.

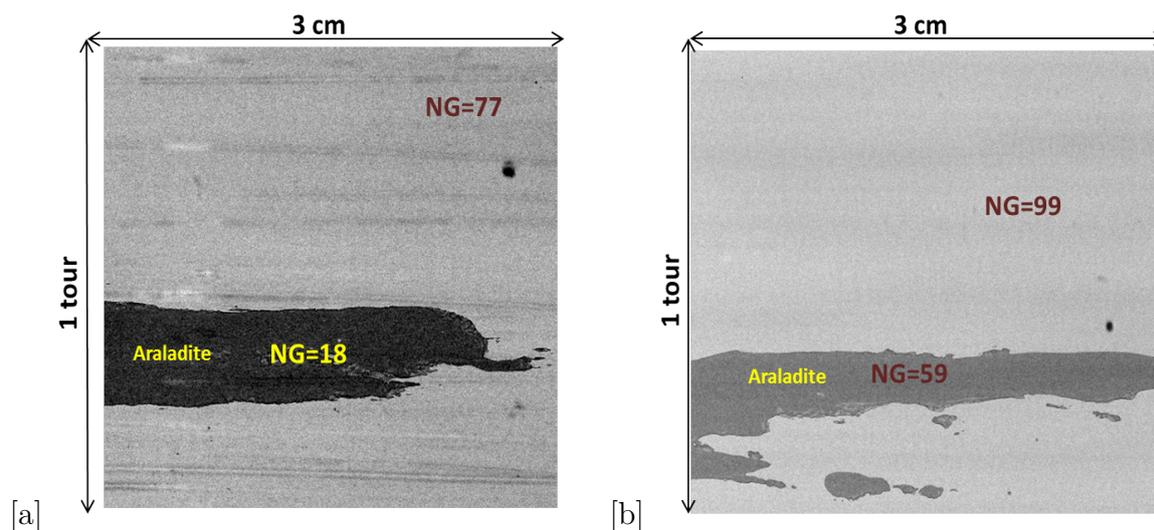


Figure 4.9 – Images acoustiques avec une couche de colle sur la face interne (a) d'une gaine en Zy-4 de type *B*, (b) d'une gaine M5 de type *C*.

La partie la plus sombre de la figure 4.9 (a) et 4.9 (b) correspond à des zones où la colle a été déposée. Lors de la réflexion, l'énergie ultrasonore est transmise dans cette couche absorbante conduisant à un coefficient de réflexion plus faible. Sur la partie claire de l'image, le coefficient de réflexion est plus important car l'énergie ultrasonore est intégralement réfléchi sur l'interface gaine/air. Cependant, la variation de contraste entre les deux figures 4.9 (a) et 4.9 (b) ne reflète pas la similarité de réponse acoustique entre les deux types de gaine Zy-4 et M5.

Ceci dit, les images ultrasonores obtenues jusqu'à maintenant ne sont pas comparables en termes de contraste parce que chaque image est visualisée sur une échelle où le contraste est maximisé, cela permet d'avoir une caractérisation fine pour voir les faibles variations à l'intérieur de la gaine et de s'adapter aux différentes variations rencontrées au niveau de la surface externe.

4.4.3 Visualisation des images ultrasonores avec une échelle fixe et normalisée

Afin de comparer les images ultrasonores de la face interne de la gaine et de les classer dans les 4 catégories présentées au début de ce manuscrit, il est important de réduire l'effet de la surface externe de la gaine sur l'écho de sa face interne. C'est pourquoi, il peut être pertinent d'utiliser un traitement supplémentaire en complémentarité avec le traitement RMS (décrit dans le chapitre 3) afin de définir une échelle de visualisation fixe et de normaliser toutes les images de la face interne par rapport à la face externe de la gaine.

En première approche, nous considérons que les couches traversées ont une épaisseur beaucoup plus importante que la longueur d'onde, nous pouvons utiliser la formule de normalisation 4.6, démontrée ci-dessous, qui ne prend pas en considération la focalisation pour connaître l'intensité acoustique sur les faces externe et interne.

L'énergie réfléchiée au niveau de la face interne de la gaine peut être représentée par l'équation suivante :

$$\mathbf{I}_{interface} = \mathbf{A}_0 \mathbf{t}_{surface} \mathbf{r}_{interface} \mathbf{t}_{surface}, \quad (4.1)$$

puisque :

$$\mathbf{t}_{surface} = 1 + \mathbf{r}_{surface}, \quad (4.2)$$

l'équation 4.1 devient :

$$\mathbf{I}_{interface} = \mathbf{A}_0 (1 + \mathbf{r}_{surface})^2 \mathbf{r}_{interface}. \quad (4.4)$$

L'énergie réfléchiée au niveau de la face externe de la gaine peut être représentée par l'équation suivante :

$$\mathbf{I}_{surface} = \mathbf{A}_0 \mathbf{r}_{surface}. \quad (4.5)$$

où (en étant focalisé à la face interne de la gaine (figure (4.10)) :

$I_{surface}$: Intensité acoustique de la face externe de la gaine, c'est l'amplitude du signal qui arrive à la surface multipliée par la réflexion à la surface.

$I_{interface}$: Intensité acoustique de la face interne de la gaine.

A_0 : Amplitude maximale de l'image de la face externe de la gaine.

t : Coefficient de transmission.

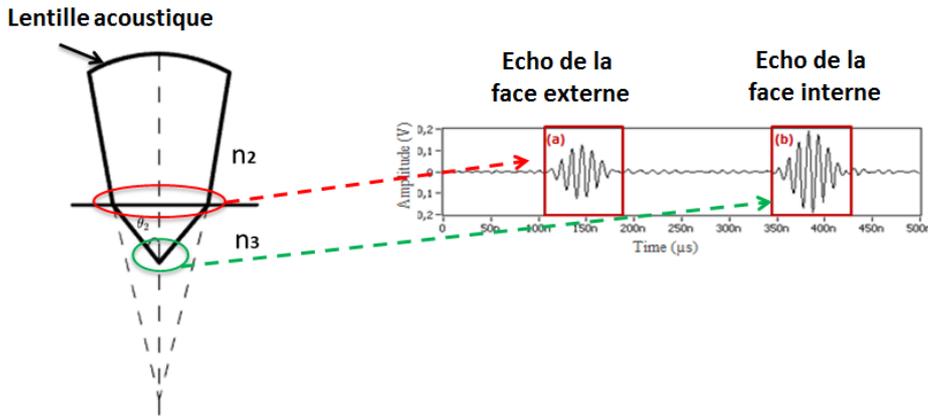


Figure 4.10 – Schéma représentant les échos réfléchis au niveau des faces externe et interne de la gaine quand la focale est en profondeur.

r : Coefficient de réflexion.

Ainsi, nous obtenons la relation :

$$\mathbf{r}_{\text{interface}} = \frac{\mathbf{I}_{\text{interface}}}{\left(1 + \frac{\mathbf{I}_{\text{surface}}}{\mathbf{A}_0}\right)^2 \mathbf{A}_0}. \quad (4.6)$$

Toutes les images acquises de la face interne seront donc par la suite normalisées, en utilisant l'équation 4.6, par rapport à la face externe de chaque type de gaine pour pouvoir par la suite prévoir l'énergie acoustique qui est rentrée dans la gaine. Elles seront également visualisées avec une échelle fixée tenant en compte de la valeur minimale et de la valeur maximale des niveaux de gris des différents types de gaines utilisées. À ce stade, en utilisant ce nouveau protocole, toutes les images peuvent être comparées.

4.5 Imagerie acoustiques des gaines avec un contact à la face interne après normalisation

La figure 4.11 représente les images ultrasonores de la face interne des mêmes gaines utilisées dans la figure 4.9 avec la même acquisition et le même post-traitement d'image. Ces images sont normalisées par rapport à la face externe de la gaine en utilisant la formule de normalisation 4.6. Elles sont également visualisées avec une échelle fixée tenant en compte de la valeur minimale et de la valeur maximale des niveaux de gris des différents types de gaines utilisées.

Les figures 4.11 (a) et 4.11 (b) représentent respectivement les images de la face interne d'une gaine Zy-4 de type D et d'une gaine M5 de type K chargées par de la colle sur une zone définie. Les valeurs de niveau de gris des zones représentant l'interface Zy-4/Air et M5/Air sont proches ; idem pour celles des zones où il y a contact au niveau de l'interface

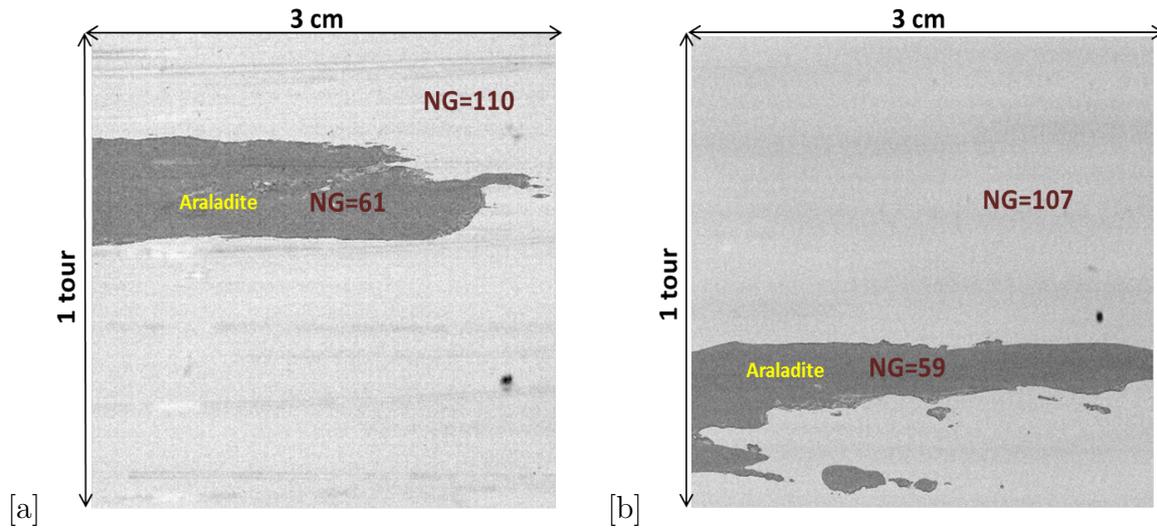


Figure 4.11 – Images acoustiques après normalisation et représentation avec la même échelle de visualisation avec une couche de colle sur la face interne (a) d’une gaine en Zy-4 de type B, (b) d’une gaine M5 de type C.

Zy-4/Colle et M5/Colle. Ceci est justifié par le fait que les coefficients de réflexion à ces interfaces sont similaires (Figure 4.12)¹.

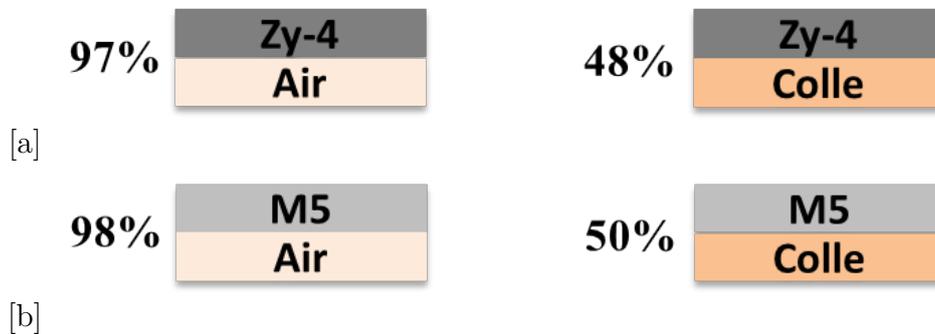


Figure 4.12 – Coefficients de réflexion pour les cas de contact (a) Zy-4/Air et Zy-4/Colle ; (b) M5/Air et M5/Colle.

La normalisation associée à la représentation à échelle fixe a donc permis de donner des valeurs de niveaux de gris équivalents pour des interfaces de même nature. La même opération de normalisation est effectuée sur des échantillons avec présence de couches de zircon.

Les figures 4.13 (a) et 4.13 (b) représentent respectivement la face interne d’une gaine Zy-4 avec une seule couche de zircon externe de 10 μm et la face interne d’une gaine Zy-4 avec une couche externe et interne de zircon de 10 μm . Les valeurs de niveau de gris des deux zones avec contact sont 110 et 107 et celles des zones sans contact sont 81 et 84. Ces valeurs sont inférieures à celles visualisées sur les figures 4.11 (a) et 4.13 (b). Ceci est dû à l’influence des deux couches de zircon externe et interne dont l’épaisseur est égale à 10 μm . La figure 4.14 représente les catégories qui peuvent être correspondantes aux cas d’interfaces des gaines *D* et *K*.

1. Le calcul de coefficient de réflexion du M5 est basé sur les mesures expérimentales.

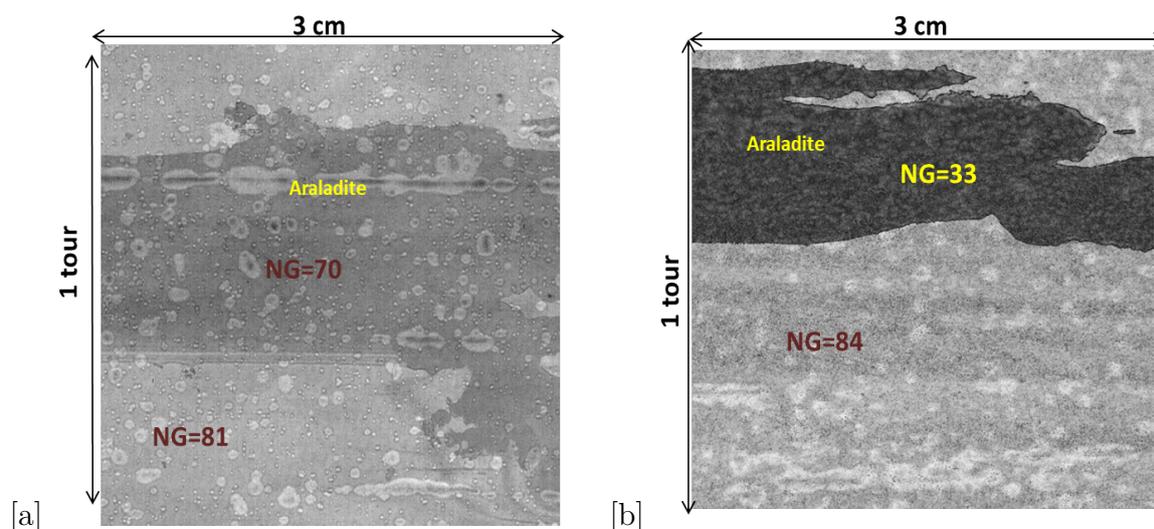


Figure 4.13 – Images acoustiques après normalisation et représentation avec la même échelle de visualisation avec une couche de colle sur la face interne d’une gaine Zy-4 (a) de type D avec une couche de $10\ \mu\text{m}$ de zircone externe (b) de type K avec une couche externe et interne de $10\ \mu\text{m}$ de zircone.

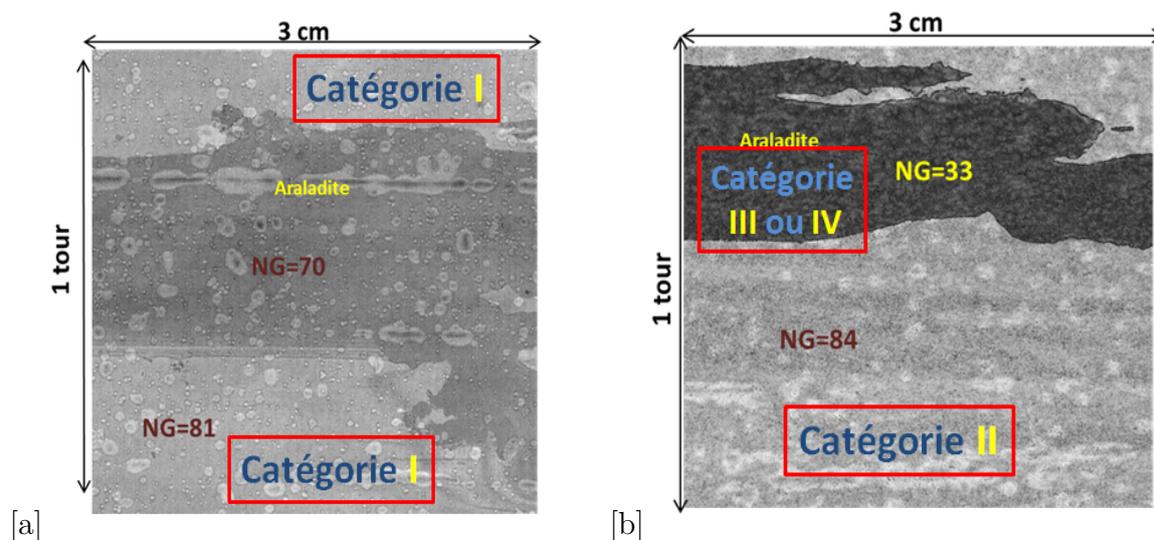


Figure 4.14 – Visualisations des catégories de la face interne de la gaine (a) I sur une gaine de type D (b) II, III ou IV sur une gaine de type K.

Discussion

- La normalisation permet de comparer les images des différentes gaines. En absence de zircone, l’amplitude de l’écho réfléchi est maximale et les valeurs des niveaux de gris sont les plus fortes sur les figures 4.11 (a) et 4.11 (b).
- Les contrastes présents sur les figures 4.13 (a) et 4.13 (b) ne permettent pas de différencier les catégories I et II. En effet, les valeurs des niveaux de gris sont très proches, de 81 pour la gaine avec zircone externe seulement (catégorie I) et de 84 pour la gaine avec zircone externe et zircone interne (catégorie II).

- En comparant les figures 4.13 (a) et 4.11, nous constatons que le niveau de gris de l'interface sur tube avec zircon externe seulement (valeur 81 sur la figure 4.13 (a)) est différent de la valeur de niveau de gris du tube sans zircon externe (valeur 110 sur la figure 4.11 (a)) : ceci montre que l'effet de la présence de la couche de zircon externe sur les échos d'interface est encore présent malgré la normalisation. Cet effet en absolu pourrait ne pas être gênant par rapport au besoin industriel, puisque nous considérons qu'une couche de zircon externe est toujours présente sur les crayons irradiés. Et d'autre part, comme déjà relevé plus haut, la valeur de niveau de gris plus faible (valeur de niveau de gris = 81) ne permet pas de distinguer cette catégorie de la catégorie II (présence de zircon interne (valeur de niveau de gris = 84)).
- L'effet des épaisseurs des couches de zircon a été étudié sur les gaines de type F et F' . Les figures 4.15 (a) et 4.15 (b) présentent les images ultrasonores réalisées sur ces gaines. Elles montrent que plus l'épaisseur de la zircon est importante, plus les amplitudes des échos sont faibles, y compris sur les zones sans contact : les niveaux de gris associés à la catégorie III (ou IV²) deviennent difficiles à distinguer des niveaux de gris de la catégorie II.

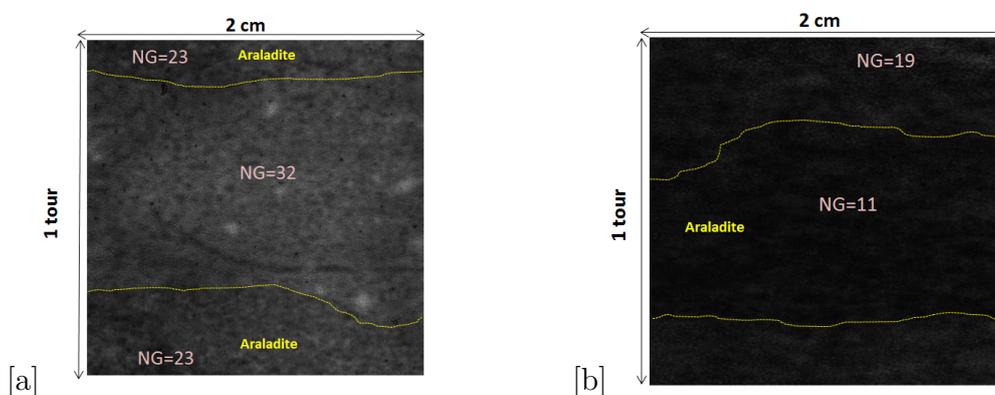


Figure 4.15 – Images acoustiques avec une couche de colle sur la face interne d'une gaine Zy-4 avec une couche externe et interne de type (a) F' avec 30 μm de zircon, (b) F avec 66 μm de zircon.

Les images 2D présentent plusieurs informations liées au système ultrasonore, les couches de zircon, les déformations qui peuvent exister sur la gaine, etc. À ce stade, il paraît pertinent de réduire l'image acoustique à un histogramme qui sera un outil supplémentaire plus simple à interpréter.

2. Nous supposons que les catégories III et IV sont les mêmes car nous nous disposons pas d'un échantillon représentant la catégorie III. Plusieurs tests ont été réalisés au laboratoire pour simuler ce cas mais c'est difficile car la couche de combustible qui s'accroche à la face interne de la gaine ne devrait pas dépasser 10 μm .

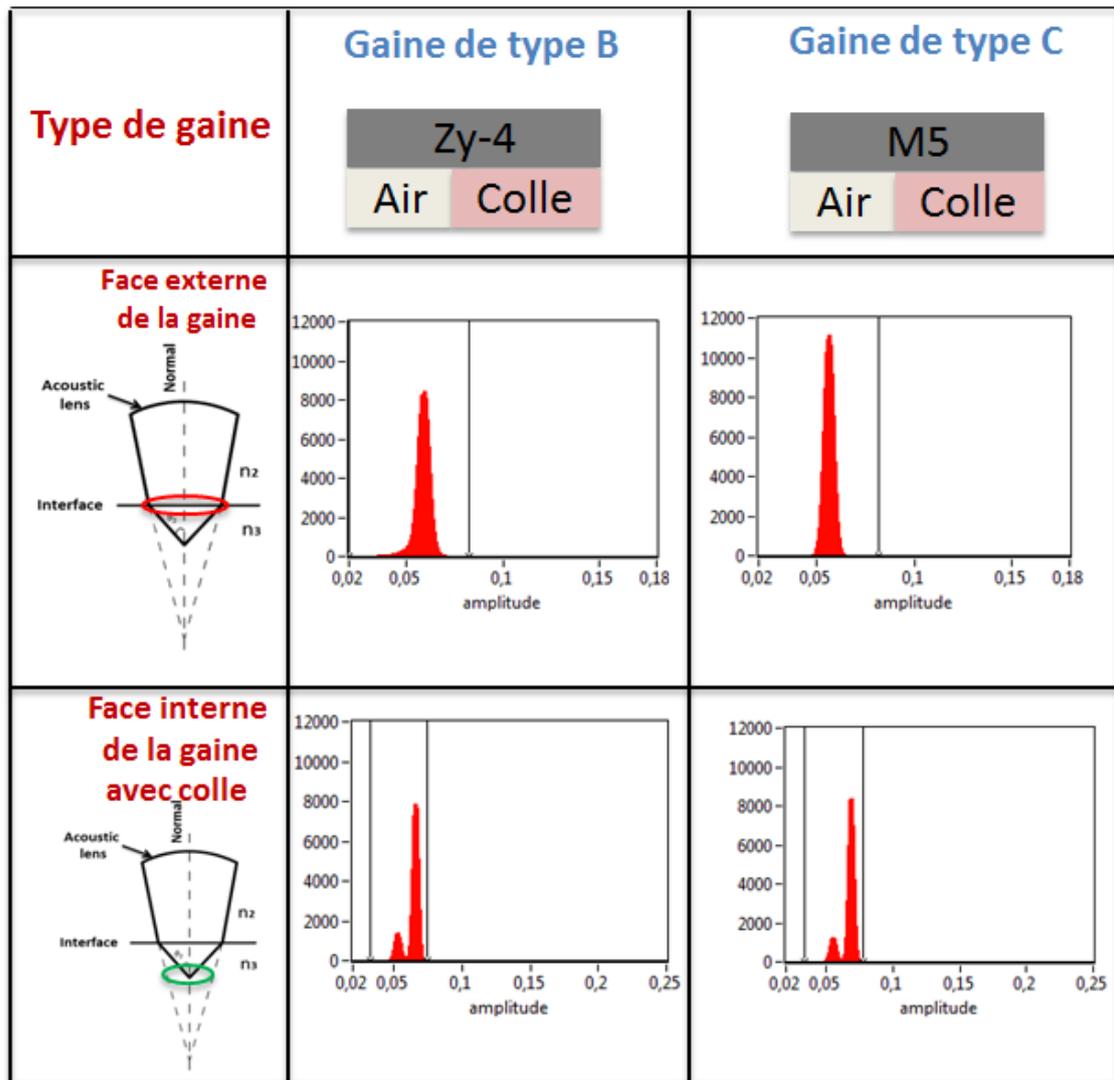


Figure 4.16 – Histogrammes représentant la dispersion des valeurs en volts des données acquises en focalisant au niveau de la face interne des gaines de type B et C.

4.6 Représentation des résultats sous forme d'histogrammes

Un histogramme représente la répartition en niveau de gris des pixels d'une image. L'axe des X correspond aux valeurs de l'amplitude du signal en volts, l'axe des Y représente le nombre de pixels qui ont des valeurs similaires d'amplitude en volts dans l'image. Par exemple, il y a presque 8000 pixels dont l'amplitude est à peu près 0.06 V sur le premier histogramme de la figure 4.16.

Nous allons commencer cette étude par tester des gaines de type B et C qui ne représentent pas un cas réel d'interface d'un crayon, mais qui permettent de comprendre la forme des histogrammes en s'affranchissant des couches de zircon. La figure 4.16 représente les histogrammes correspondants aux gaines B et C. Quand il n'y a que l'air au niveau d'une interface de la gaine, il y a un seul pic comme le montre la première ligne de la figure 4.16. Dès qu'il y a de la colle sur la face interne de la gaine, il y a l'apparition d'un

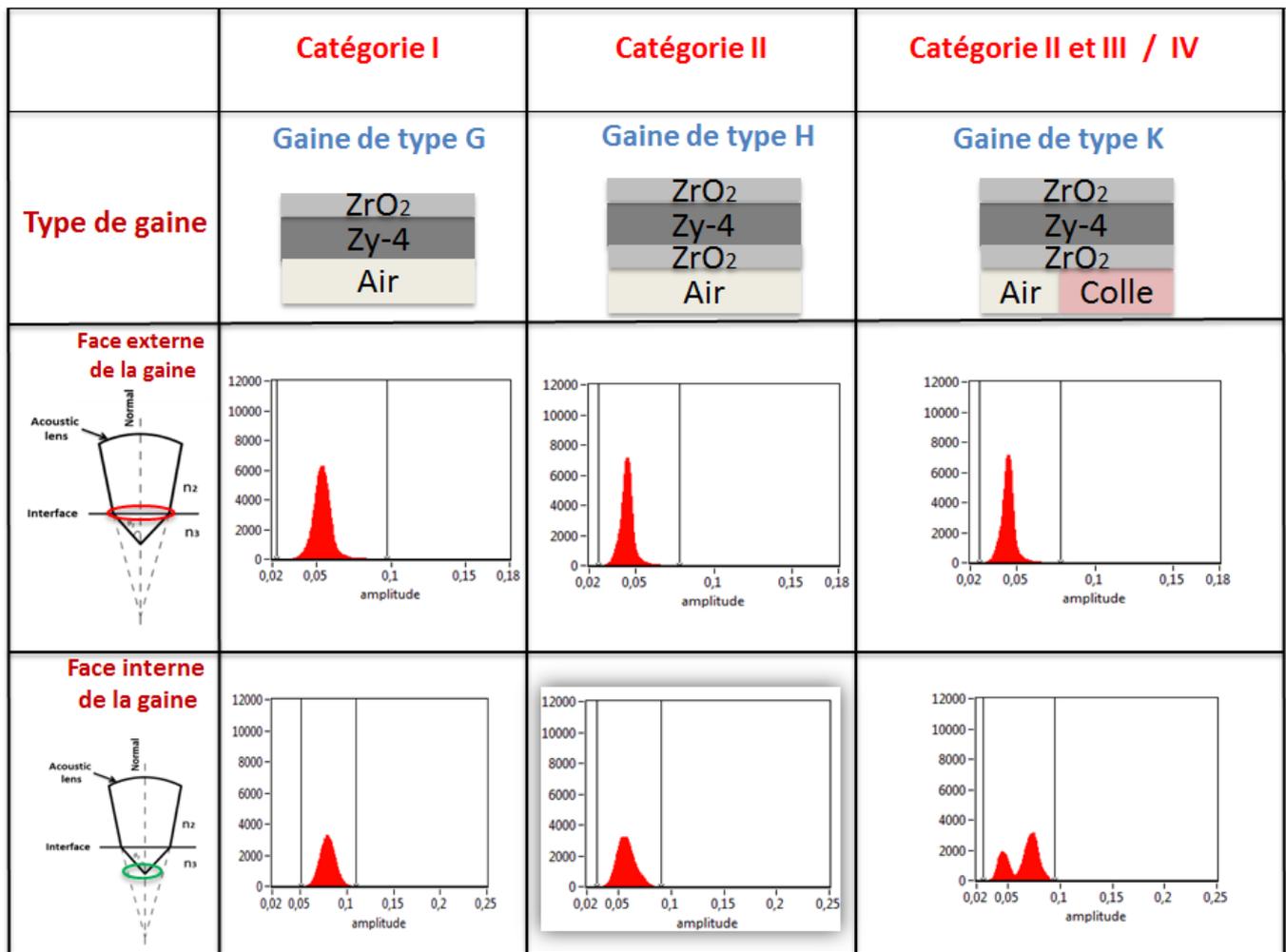


Figure 4.17 – Histogramme représentant la dispersion des valeurs de volts des données acquises au niveau de la face interne des gaines de type *G*, *H* et *K*.

deuxième pic sur la deuxième ligne de la même figure. Cela montre s'il y a des éléments ajoutés à l'intérieur de la gaine ou non. La hauteur des pics peut être reliée à la surface du matériau détectée au niveau de la face interne de la gaine. De façon similaire, leur largeur est apparentée à l'incertitude de couleur liée au bruit de l'instrumentation et du matériau. Les 2 matériaux Zy-4 et M5 présentent des histogrammes similaires, avec cependant un pic de l'écho de surface externe moins étalé sur le M5.

La figure 4.17 représente les histogrammes des catégories d'interfaces I, II et III/IV. La présence de la zircone externe (gaine de type *G*) a réduit la hauteur du pic de l'histogramme (voir la première ligne de la figure 4.16 et celle de la figure 4.17 pour les catégories I et II). Les pics des échos de l'interface sont également plus étalés (deuxième ligne catégorie I et II de la figure 4.17), cela peut être lié à la dispersion de la couche de zircone qui n'est pas homogène sur la surface externe de la gaine. Quand la zircone interne est ajoutée (gaine de type *H*), l'histogramme ne présente pas une variation remarquable par rapport à la gaine précédente. Cependant, l'apparition d'un deuxième pic sur l'histogramme de la gaine *K* permet de confirmer la présence d'un contact (colle) au niveau de la face interne de la gaine et de retrouver les catégories II et III/IV.

Ainsi la représentation sous forme d'histogramme peut aider à détecter la présence si-

multanée de deux types d'interface sur une image, même si elle est peu contrastée. Les résultats obtenus en fonction de la forme des histogrammes correspondants aux échantillons utilisés pour cette étude sont résumés dans la figure 4.18. Il faut cependant noter que si l'image est réalisée sur une zone ne présentant qu'une catégorie (histogramme à un seul pic), il pourrait s'agir également de la catégorie III ou IV.

Forme de l'histogramme de l'image de la face interne	Interface à l'intérieur de la gaine	Catégorie correspondante
Un seul pic étroit	Zy-4/Air Ou M5/Air	0
2 pics étroits	Zy-4/Air + Colle Ou M5/Air + Colle	0
Un seul pic large	Zircone externe/Zy-4 Ou Zircone externe/Zy-4/Zircone interne	I Ou II
2 pics larges	Zircone externe/Zy-4/Zircone interne + Air ET Zircone externe/Zy-4/Zircone interne + Colle	II ET III/IV

Figure 4.18 – Interfaces à l'intérieur de la gaine en fonction de la forme de l'histogramme.

Discussion

La méthode de normalisation et la représentation par histogramme portent des informations précieuses sur l'influence de la zircone sur l'écho de la face interne et la présence d'un contact ou non à ce niveau permettant de distinguer les catégories d'interface sans matière adhérente (I ou II) des catégories avec colle sur la couche de zircone interne (catégories III ou IV), si elles sont présentes simultanément. Cependant, elles atteignent leurs limites pour distinguer clairement les catégories I et II et lorsqu'il y a des couches de zircone importantes.

De manière à comprendre l'influence des couches de zircone et d'évaluer si les catégories I et II pourront être distinguées, ou si elles se recouvrent suivant l'épaisseur de la zircone externe, un modèle permettant de voir la réponse du transducteur ultrasonore en fonction des couches traversées sera utilisé. Cela fera l'objet de la prochaine partie.

4.7 Modélisation du système multicouche

Pour pouvoir aller plus loin dans l'étude des catégories [I et II] et [III et IV], un logiciel de modélisation du laboratoire est utilisé, il a pour but in fine de bien interpréter les contrastes visualisés sur les images acquises. Cette modélisation permettra de comparer les signaux simulés avec ceux expérimentaux.

Dans notre configuration expérimentale, le signal est propagé dans une structure multicouche jusqu'à la face interne de la gaine. Par modélisation [53], il est possible de reconstruire un signal théorique issu du spectre du signal expérimental. La figure 4.19 représente le signal expérimental et simulé quand le transducteur acoustique est focalisé en surface d'une gaine de type A (Interface : Eau/Zy-4) et la figure 4.20 représente le signal expérimental et simulé quand le transducteur acoustique est focalisé en interface Zy-4/Air (de la même gaine). Ces premiers résultats montrent qu'il y a une concordance dans la forme du signal focalisé à l'interface et dans le temps d'arrivée des échos des signaux.

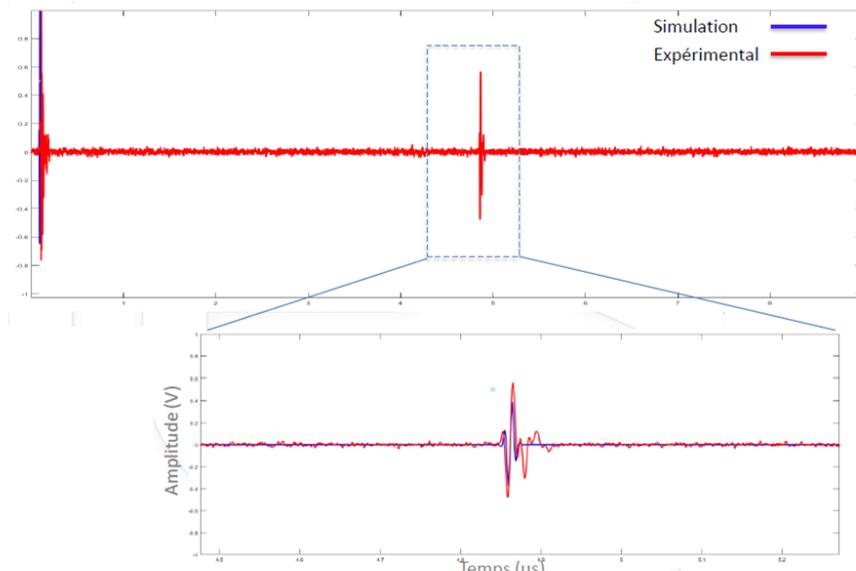


Figure 4.19 – Représentation du signal expérimental (en rouge) et simulé (en bleu) quand le transducteur acoustique est focalisé en surface d'une gaine de type A.

Après la simulation du cas où il y a présence des couches de zircon, nous remarquons que les signaux théoriques sont positionnées au même temps que les signaux expérimentaux. Cependant, il y a une grande différence sur la forme des échos. Il faut savoir qu'en réalité il y a plusieurs paramètres à prendre en considération pour modéliser ce système multicouche à savoir les variations des épaisseurs des couches de zircon, leur densité et la vitesse de propagation des ultrasons dans chaque matériau. Les propriétés³ de zircon utilisées dans ce modèle sont issues de la référence [54].

La figure 4.21 représente la réponse expérimentale et simulée du capteur en présence d'une seule couche de zircon à la face externe d'une gaine de type G. Si de plus la gaine possède

3. A savoir qu'en réalité les propriétés de la zircon externe et de celle interne sont différentes. Comme nous ne disposons pas des propriétés de chaque type de zircon, nous allons supposer que les deux types de zircon ont les mêmes propriétés dans ce modèle.

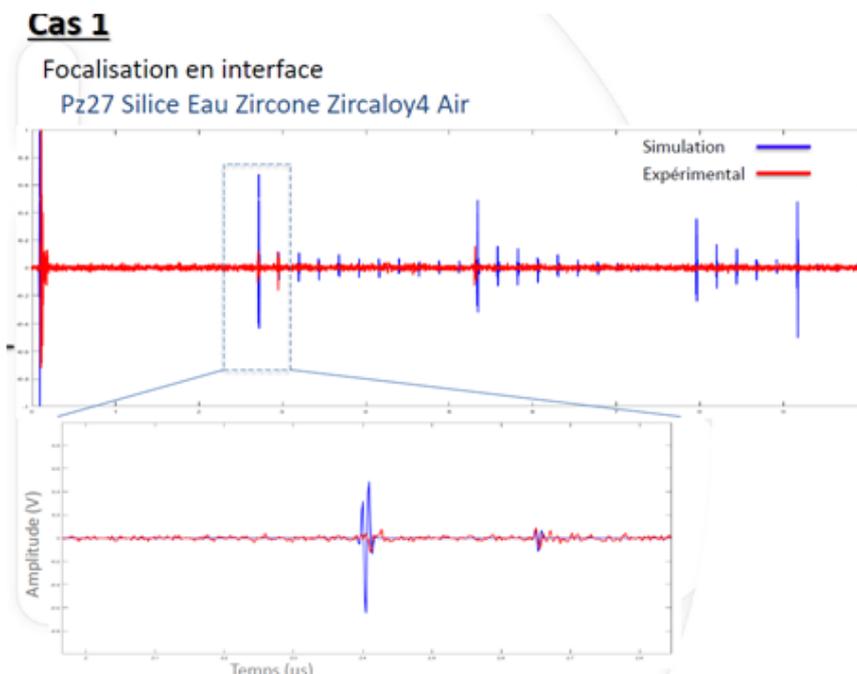


Figure 4.20 – Représentation du signal expérimental (en rouge) et simulé (en bleu) quand le transducteur acoustique est focalisé en interface de la gaine de type A.

une couche supplémentaire de zircon interne (gaine de type *H*), la forme de l'écho de fond change comme le montre la figure 4.22.

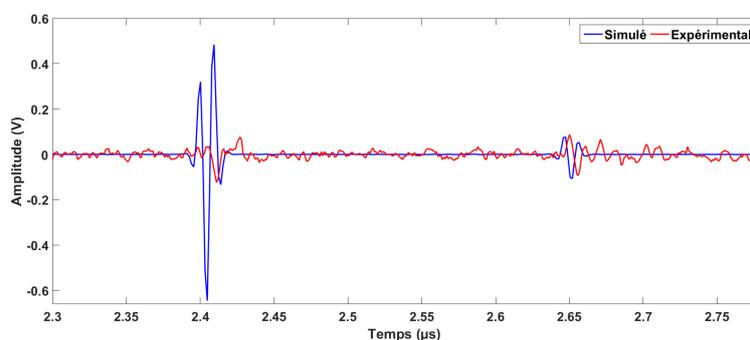


Figure 4.21 – A-Scan quand le transducteur acoustique est focalisé en interface d'une gaine de type G.

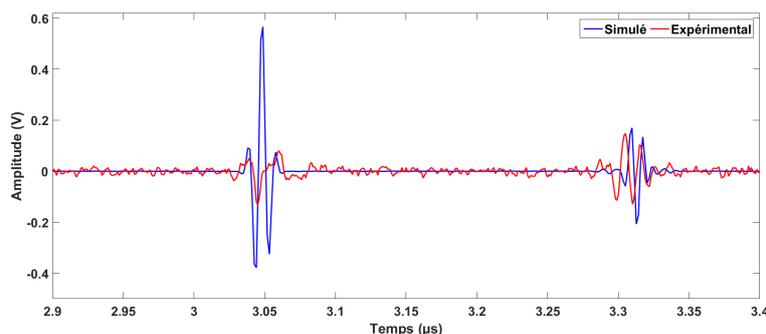


Figure 4.22 – A-Scan quand le transducteur acoustique est focalisé en interface d'une gaine de type H.

La figure 4.23 représente le signal expérimental et simulé pour une épaisseur de zirconium externe et interne de $40 \mu\text{m}$ et une densité d'une valeur de 5680 kg.m^{-3} . Cette couche est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde qui fait à peu près $44 \mu\text{m}$ dans le Zy-4.

Si nous changeons la densité des deux couches de zirconium avec une valeur de 3000 kg.m^{-3} , l'écho de la face interne visualisé sur la figure 4.24 devient plus important et commence à s'approcher de l'écho expérimental. Cela peut nous aider à expliquer pourquoi il n'y a pas les mêmes valeurs de niveau de gris sur les deux images des figures 4.11 (a) et 4.11 (b), car la formule de normalisation et ce modèle utilisé dans cette partie ne prennent pas en compte les résonances de couches. Il faut développer un modèle plus complexe. Les valeurs de densité modifiées à ce niveau ont été choisies afin de s'approcher d'une résonance de la couche.

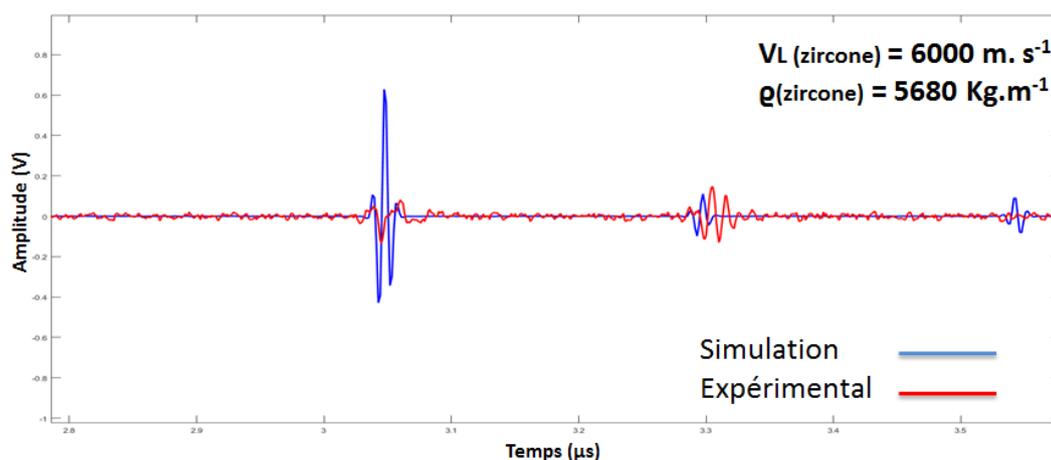


Figure 4.23 – Représentation du signal expérimental (en rouge) et simulé (en bleu) quand le transducteur acoustique est focalisé en interface : Pz27/Silice/Zirconium/Zircaloy-4/Zirconium/Air pour une couche de zirconium de $40 \mu\text{m}$ et une densité de 5680 Kg.m^{-3} .

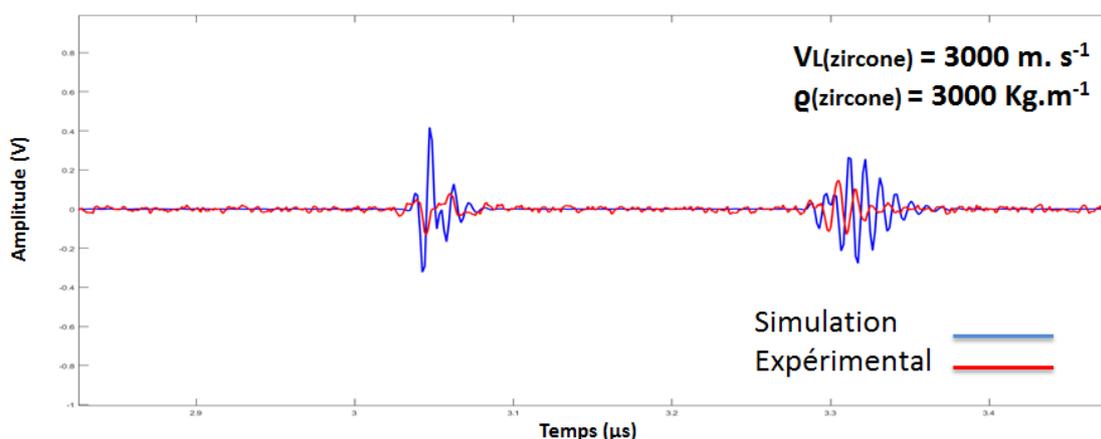


Figure 4.24 – Représentation du signal expérimental (en rouge) et simulé (en bleu) quand le transducteur acoustique est focalisé en interface d'une gaine de type H avec une couche de zirconium externe et interne de $40 \mu\text{m}$ et une densité de 3000 Kg.m^{-3} .

De plus, le modèle utilisé simule dans une configuration plane donc il ne prend pas en considération la focalisation du transducteur ultrasonore, ce qui veut dire qu'au niveau de l'amplitude cela ne correspond pas parfaitement à la réalité. Cependant, il distingue quand il y a une couche de zirconium interne supplémentaire permettant ainsi de séparer

les cas I et II. Cela montre qu'une future étude approfondie sur la simulation des signaux représentant les différentes catégories d'interface, sera d'un grand intérêt pour pouvoir distinguer avec précision les interfaces contenant des couches de zircon externe et/ou interne. Il est cependant nécessaire de connaître les propriétés mécaniques précises de la zircon externe et interne des échantillons dont nous disposons.

4.8 Représentativité des échantillons

Les résultats présentés ont été obtenus sur des échantillons de laboratoire pour lesquels les natures des interfaces ont été modifiées. Cependant, il est obligatoire de faire des expérimentations sur des gaines permettant de se rapprocher des conditions réelles d'utilisation du microscope.

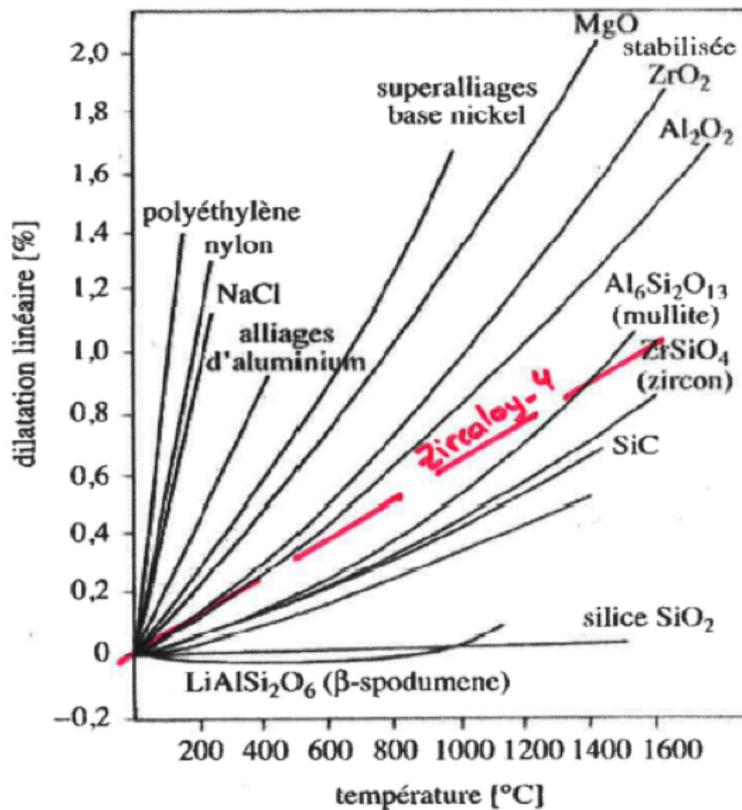


Figure 4.25 – Caractéristiques comparées de dilatation thermique de différents matériaux avec celles des céramiques polycristallines

Bien que permettant de dimensionner en première approche le système et de démontrer sa très forte sensibilité, disposer de gaines représentatives de la variabilité des échos pouvant survenir lors de contacts solide/solide observés dans les catégories III et IV de la figure 4.1 est nécessaire. En particulier, les contrastes observés sur les figures précédentes seront fortement impactés par un réel contact pastille/gaine et ne peuvent être extrapolés directement aux catégories III et IV. Une étude a de ce fait été menée afin de concevoir des échantillons représentatifs des catégories d'interfaces de l'étude. Afin de réaliser expérimentalement l'échantillon, il a été décidé d'introduire dans la gaine des pastilles solides. Celles-ci doivent posséder simultanément une impédance acoustique similaire au

combustible nucléaire et un coefficient de dilatation supérieur à celui de la gaine. Du fait des propriétés présentées dans la figure 4.25, la zircone et l'alumine ont été éliminées.

Le matériau choisi est le Zerodur. Il s'agit d'un verre vitrocéramique avec un coefficient de dilatation de $0.05e^{-6}k^{-1}$ inférieur à celui du Zy-4 ($6e^{-6}k^{-1}$) et un coefficient de réflexion (31%) proche de celui au niveau de l'interface Zy-4/ UO_2 (29.4%). Les échantillons sont des mini-crayons réalisés conjointement par le SETC (CEA Cadarache) pour la conception et la fabrication et le SEMI (CEA Saclay) pour la partie fluage et mesures de diamètres. Ils présentent des différences, du point de vue microstructure et contact, avec les crayons REP irradiés : la zircone interne n'est pas de la même densité, les circonvolutions qu'elle forme avec le combustible ne seront pas simulées, le matériau interne lui même sera du verre trempé, différent de la structure du combustible en fin de vie d'un combustible REP.

4.8.1 Premières images de la face interne des échantillons fabriqués

Les échantillons ont été reçus vers la fin du mois d'août 2018, durant la période de finalisation de ce manuscrit. Nous avons choisi de commencer les premières expériences sur une éprouvette PAST_02, en Zy-4 sans couches de zircone, chargée avec 12 pastilles en Zerodur et des cales en alumine pour faciliter l'imagerie acoustique de cette gaine. Elle est représentée sur la figure 4.28.

Les 12 pastilles chargées dans la gaine sont classées suivant 4 formes différentes montrées dans les figures 4.26 et 4.27.

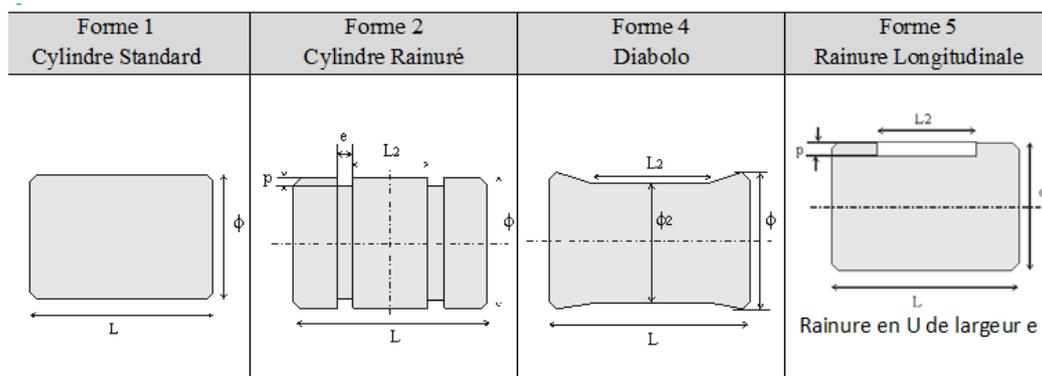


Figure 4.26 – Formes des pastilles en Zerodur chargées dans l'échantillon représentatif.

La figure 4.29 représente les premières images obtenues sur cet échantillon.

D'après ces premiers tests, les contrastes attendus pour chaque type de forme ne se voient pas sur l'image acoustique de la figure 4.29, cependant, nous visualisons les interpastilles et quelques endroits où il y a potentiellement un contact au niveau de la face interne de l'échantillon.

Actuellement, nous n'avons que peu de pistes pour expliquer l'écart entre image attendue et observée. Le microscope acoustique ayant prouvé tout au long de ce manuscrit sa capacité à imager l'interface interne d'un crayon, nous émettons en toute première hypothèse

Type	Matériau	Forme	L (mm)	Φ (mm)	L2 (mm)	e (mm)	p (mm)	$\Phi 2$ (mm)
TS-1	Zerodur	F1	10	8.32	-	-	-	-
TS-2	Zerodur	F1	10	8.31	-	-	-	-
TS-3	Zerodur	F1	10	8.30	-	-	-	-
TR-1	Zerodur	F2	10	8.31	4	1	0.5	-
TR-2	Zerodur	F2	10	8.30	4	1	0.5	-
TD-1	Zerodur	F4	10	8.32	6	-	-	8.2
TSR-1	Zerodur	F5	10	8.32	6	0.5	0.5	-
TSR-2	Zerodur	F5	10	8.31	6	0.5	0.5	-
TSR-3	Zerodur	F5	10	8.30	6	0.5	0.5	-

Figure 4.27 – Formes des pastilles en Zerodur chargées dans l'échantillon représentatif.

que les contacts envisagés dans l'éprouvette témoin ne sont en réalité pas ceux attendus et que le fluage de la gaine vers les pastilles, bien qu'ayant permis d'atteindre le contact comme le montrent les mesures de diamètre effectuées, n'a pas été suffisant pour établir un contact fort sur tout le crayon.

4.9 Conclusion

Dans ce chapitre, des images réalisées sur le banc prototype ont été obtenues sur des échantillons simulant les différentes catégories de l'interface pastille-gaine décrites dans le premier chapitre. Les résultats obtenus jusqu'à maintenant montrent la capacité du système à réaliser des images de la surface interne des différents tubes de gainage avec ou sans présence des couches de zircone et sa sensibilité aux différentes variations présentes au niveau de la face interne de la gaine. Il est possible de distinguer les catégories d'interface sans matière adhérente (I ou II) des catégories avec colle sur la couche de zircone interne (catégories III ou IV), si elles sont présentes simultanément. Cela est possible grâce à la variation du contraste des valeurs de niveau de gris visualisées sur les images ultrasonores obtenues. Ces résultats mettent également en évidence la difficulté de s'affranchir de l'effet de la présence de zircone externe sur l'écho de l'interface, malgré l'opération de normalisation. La distinction entre les catégories I et II n'est pas facilement réalisable, c'est pourquoi les premiers résultats d'une modélisation plane du système multicouche qui correspond à notre travail ont été montrés. Cette modélisation pourrait éventuellement, avec une étude approfondie sur les signaux, donner de meilleurs résultats pour pouvoir comparer les échos en présence des couches de zircone externe et/ou interne. Une première expérience sur des échantillons représentatifs a été réalisée montrant ainsi que le microscope peut détecter des variations à l'intérieur de la gaine. Cependant, il faut poursuivre les études sur l'ensemble des échantillons et réaliser des études de répétabilité permettant de valider les images obtenues.

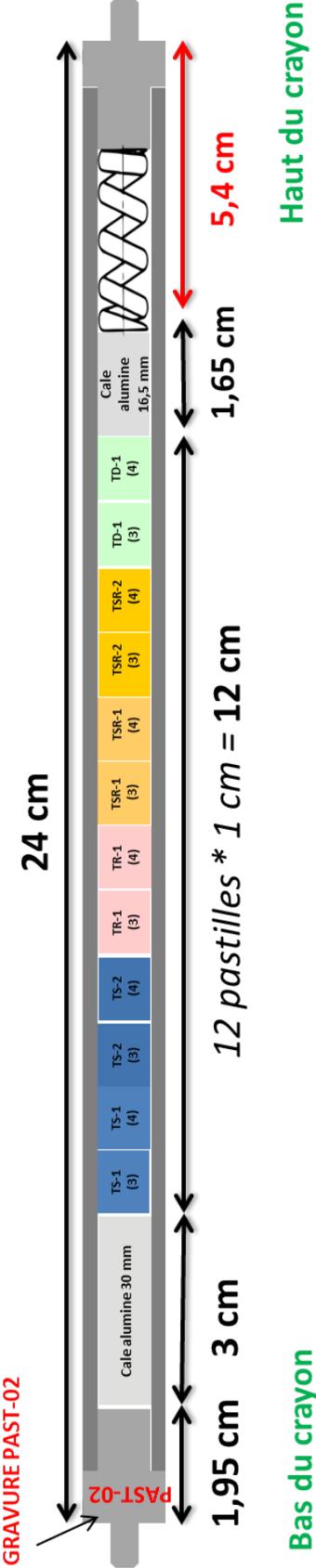


Figure 4.28 – Représentation d’une gaine en Zy-4 comportant 12 pastilles en Zerodur avec différentes formes.

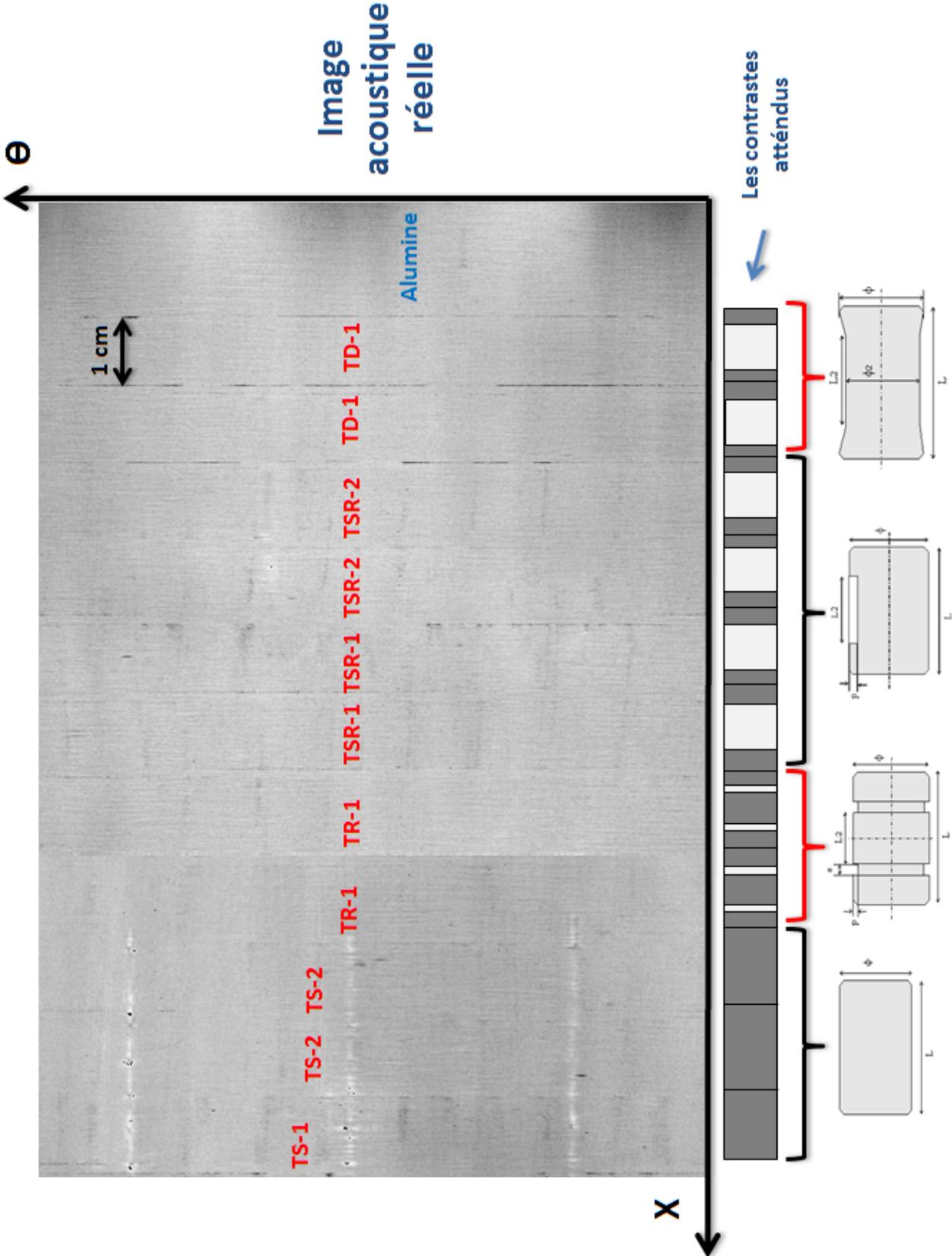


Figure 4.29 – Imagerie ultrasonore sur 11 pastilles suivant la longueur d’une éprouvette représentative.

Conclusions et perspectives

La surface interne des tubes de gaine de crayons combustible REP se modifie progressivement au cours de l'irradiation avec création d'une couche de zircone interne et présence de combustible adhérent à cette couche. La nature de cette interface joue un rôle important dans le comportement du crayon en fonctionnement normal mais également si celui-ci venait à subir un transitoire incidentel ou accidentel. A l'heure actuelle, seuls des examens à caractère destructif permettent la caractérisation de l'interface entre la pastille et la gaine. Or l'utilisation d'une méthode de visualisation non destructive de cette interface tout le long d'un crayon, avec une bonne résolution axiale et azimutale (de l'ordre de quelques dizaines de microns), présenterait plusieurs intérêts : d'une part cet examen permettrait de valider les modélisations du comportement thermo-mécanique du crayon, d'autre part, il permettrait de connaître l'état de contact d'un crayon irradié avant sa réirradiation en réacteur expérimental, et de mieux comprendre son comportement durant l'essai. C'est pourquoi une collaboration a été lancée entre le CEA et l'IES, avec le soutien d'EDF et FRAMATOME. C'est dans ce contexte que s'est déroulé le travail de thèse, avec pour objectif de développer et qualifier, sur un banc prototype, une méthode non destructive d'imagerie de la face interne de gaine, basée sur le principe du microscope acoustique, habituellement mis en oeuvre sur des géométries planes.

Le premier chapitre développe le contexte nucléaire dans lequel s'inscrit ce projet et présente par la suite les notions de base nécessaires pour pouvoir avancer dans la lecture de ce manuscrit. Ensuite, les principales sollicitations qui rentrent en jeu dans l'interaction pastille-gaine ont été exposées. Ce chapitre se termine par la description de la problématique et les objectifs attendus de cette thèse.

C'est au niveau du deuxième chapitre que la microscopie acoustique classique et le transducteur ultrasonore conçu spécifiquement pour cette étude ont été présentés. Une caractérisation de sa résolution latérale et axiale a été vérifiée théoriquement et expérimentalement. Cela a été réalisé grâce à des échantillons de référence plans fabriqués, par photolithographie, à la salle blanche de l'université de Montpellier montrant ainsi que la résolution latérale du capteur utilisé est aux alentours de 30 μm pour une épaisseur dépassant 500 μm . De la même manière, il a été démontré que le transducteur utilisé peut détecter, dans des configurations favorables, des épaisseurs de 2,9 μm . Tous ces résultats sur les résolutions axiales et latérales sont compatibles avec les mesures souhaitées sur les crayons après irradiation en base ou sur les mini-crayons avant et après transitoires incidentels ou accidentels :

- Epaisseur minimale détectée (3 μm) représentative de l'épaisseur d'intérêt minimale de zircone interne qui peut se créer dans le crayon irradié.
- Résolution latérale mesurée représentative des îlots de zircone interne qui peuvent

se former dans le crayon.

Le troisième chapitre décrit la conception et la réalisation du banc prototype destiné à réaliser de la microscopie acoustique sur géométrie cylindrique en laboratoire à l'IES. Les différentes parties mécanique, électronique et acoustique ont été présentées. La tête de mesure est une version améliorée obtenue après plusieurs essais et expériences permettant d'éviter les contraintes pouvant dégrader la qualité des images acquises. Les premières expériences réalisées sur une gaine vierge ont montré la capacité du système à obtenir des images de haute résolution en profondeur. Ces résultats démontrent la capacité du microscope à détecter des variations de qualité d'interface à l'intérieur d'une gaine. Ces conclusions sont vraies pour les matériaux choisis dans cette étude, à savoir la colle et les billes de verre.

Le quatrième chapitre concerne l'étude des différentes catégories de l'interface pastille-gaine à partir d'acquisitions réalisées sur échantillons simulants, élaborés à partir de tubes de gaine avec ou sans zircone et chargés localement de colle. Les images présentées montrent la capacité du prototype à réaliser des images de l'interface des différents tubes de gainage et sa sensibilité aux différentes variations présentes au niveau de la face interne de la gaine. Afin de pouvoir comparer et interpréter les images, une méthode de normalisation a été mise en place, ainsi qu'une représentation par histogramme. Il est ainsi possible de distinguer les catégories d'interface sans matière adhérente (I ou II) des catégories avec présence de colle sur la couche de zircone interne (catégories III ou IV), si elles sont présentes simultanément. Cependant, la distinction des catégories I et II (absence ou présence de zircone interne, sans combustible adhérent, avec présence de zircone externe) reste difficile. C'est pourquoi en fin de ce chapitre, une modélisation multicouche a été initiée.

Le microscope acoustique conçu et réalisé permet de réaliser l'imagerie haute résolution de la face interne de la gaine en présence d'une couche de zircone externe et/ou interne. Les acquisitions réalisées sur échantillons simulants, élaborés à partir de tubes de gaine avec ou sans zircone et chargés localement de résine, montrent la capacité de la méthode à détecter les changements de structure de la surface interne de la gaine.

Au niveau de la modélisation, il paraît pertinent d'aller plus loin pour améliorer la compréhension des échos obtenus en présence de zircone externe ou interne. La réalisation d'analyses fréquentielles pourrait également donner de meilleurs résultats. La comparaison aux résultats expérimentaux nécessitera de mesurer précisément les propriétés mécaniques des couches de zircone, externe et interne, des échantillons observés.

En ce qui concerne les échantillons simulants, un crayon intégrant toutes les catégories, avec la possibilité d'avoir les catégories I et II sur la même image, serait d'un grand intérêt pour connaître la variation de la dynamique de contraste, et la limite basse du coefficient de réflexion, qui permettrait de fixer l'échelle à laquelle il sera judicieux de visualiser les images acoustiques. Une meilleure représentativité des échantillons simulants, avec la réalisation de contact zircone interne/verre plutôt que zircone interne/colle est également une piste d'amélioration pour aboutir à l'obtention d'images interprétables en termes de nature de l'interface.

L'objectif in fine est de disposer d'un microscope acoustique dédié à l'imagerie haute résolution en profondeur qui serait mis en œuvre pour le contrôle de crayons irradiés,

sur un banc de mesure existant dans une cellule chaude. Le travail effectué durant cette thèse permet de spécifier le besoin pour la réalisation d'une tête de mesure nucléarisée, compatible avec cet environnement.

Communications

C-ACTI : Communications avec actes dans un congrès international

H. Saikouk, D. Laux, E. Le Clézio, B. Lacroix, K. Audic, R. Largenton, E. Federici, G. Despaux. Microscopie acoustique pour l'imagerie ultrasonore de l'interface Pastille-Gaine dans un crayon combustible. CIMSI, F Maroc, 19-22 octobre 2016.

H. Saikouk, D. Laux, E. Le Clézio, B. Lacroix, K. Audic, R. Largenton, E. Federici, G. Despaux. High frequency acoustic microscopy imaging of Pellet/Cladding interface in nuclear fuel rods. Hotlab, Karlsruhe (Allemagne), 2-5 octobre 2016.

C-ACTN : Communications avec actes dans un congrès national

H. Saikouk, D. Laux, E. Le Clézio, B. Lacroix, K. Audic, R. Largenton, E. Federici, G. Despaux. Imagerie par microscopie acoustique haute résolution de l'interface pastille-gaine dans un crayon combustible. CFA, Le Havre (France), 22-27 avril 2018.

COM-I : Communications sans actes dans un congrès international ou national

H. Saikouk, D. Laux, E. Le Clézio, B. Lacroix, K. Audic, R. Largenton, E. Federici, G. Despaux. High frequency acoustic microscopy imaging of Pellet/Cladding interface in nuclear fuel rods. AFPAC, 2017 Marseille (France), 23-25 Janvier 2017.

ACL : Articles dans revues internationales ou nationales

H. Saikouk, D. Laux, E. Le Clézio, B. Lacroix, K. Audic, R. Largenton, E. Federici, G. Despaux. High frequency acoustic microscopy imaging of Pellet/Cladding interface in nuclear fuel rods. IEEE UFFC, à soumettre (2018).

Bibliographie

- [1] D. Baron. Notions de physique nucléaire et application aux réacteurs. Deuxième année. (page 13), (page 26)
- [2] J. Couturier and M.Schwarz. *Etat des recherches dans le domaine de la sreté des réacteurs à eau sous pression*. EDP Sciences, 2017. (page 13), (page 27)
- [3] CEA. Le fonctionnement d'un réacteur nucléaire. (page 13), (page 27)
- [4] CEA Saclay et Groupe Moniteur. Les combustibles nucléaires. (page 13), (page 19), (page 29), (page 31), (page 33)
- [5] D. Baron. Les crayons combustible des réacteurs à eau pressurisée de grande puissance (tranches 900 et 1300 mwe). Deuxième année. (page 13), (page 28), (page 29), (page 30), (page 32), (page 34)
- [6] H. Bailly, D. Menessier, and C. Prunier. *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides*. Eyrolles, 1996. (page 13), (page 34)
- [7] M. Benoit Mazerès. *Etude expérimentale et modélisation de l'oxydation et des transformations de phases associées dans les gaines en alliage de zirconium*. Université de Toulouse, Thèse, 2013. (page 13), (page 35)
- [8] L. Guy, D. Jaques, M. Pierre, A. Rosemarie, and C. Ghislain. Expérience du cea sur le comportement en transitoire des combustibles UO_2 -gaines zircaloy. 87 :236–246. (page 13), (page 35)
- [9] H. Liu. *Stratégie de raffinement automatique de maillage et méthodes multi-grilles locales pour le contact : application à l'interaction mécanique Pastille-Gaine*. Université d'Aix - Marseille, Thèse, 2016. (page 13), (page 38)
- [10] Y. Guerin, D. Parrat, and J. Noirot. *Nuclear Fuels for Light Water Reactors and Fast Reactors*. International School In Nuclear Engineering, 2013. (page 13), (page 38)
- [11] T. Helfer. *Étude de l'impact de la fissuration des combustibles nucléaires oxyde sur le comportement normal et incidentel des crayons combustible*. École Centrale, Lyon, 2006. (page 13), (page 38)
- [12] K. Whittle. *Nuclear Materials Science*. IOP, 2016. (page 13), (page 39)
- [13] A. Dekious. *Etude de la réponse acoustique des collages directs et temporaires*. Université de Montpellier, Thèse, 2016. (page 14), (page 49), (page 51)

-
- [14] C. De Mello Da Silva. *Microscopie acoustique hautes fréquences : application à la caractérisation de matériaux en multicouches*. Université de Montpellier, Thèse, 1993. (page 14), (page 67)
- [15] Y. Guerin, D. Parrat, and J. Noirot. *Nuclear Fuels for Light Water Reactors and Fast Reactors*. International School In Nuclear Engineering, 2013. (page 19)
- [16] H. Sava and J.F. Villard. *Les réacteurs expérimentaux, leur utilisation, leur histoire ...* CEA, 2008. (page 20)
- [17] A. Parrot. *Comportement et rupture des alliages de zirconium de la gaine du crayon combustible des centrales nucléaires en situation accidentelle de type RIA (Reactivity Insertion accident)*. Séminaire centre des Matériaux - Evry, 2012. (page 20)
- [18] R. Lenain. Physique nucléaire et sûreté des réacteurs "des situations maîtrisables par conception : L'exemple de l'accident d'éjection d'une grappe de contrôle". (page 26)
- [19] CEA. L'énergie nucléaire : fusion et fission. (page 26)
- [20] P. Boiron. Réacteurs nucléaires. B8. (page 28)
- [21] CEA. Le réacteur à eau pressurisée. (page 28)
- [22] 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. (page 28), (page 33), (page 34)
- [23] C. Lemaignan. *Sciences des matériaux pour le nucléaire*. EDP Sciences, 2004. (page 29)
- [24] R. Largenton. *Modélisation du comportement effectif du combustible MOX par une analyse micro-mécanique en champs de transformation non uniformes*. Université de Provence Aix Marseille I, Thèse, 2012. (page 32)
- [25] Y. Guérin and J. Henckes. Conception et fabrication de combustibles à base d'uranium. B8. (page 32)
- [26] J. Abgrall, H. Bailly, and A. Milesi. Fabrication du combustible à base de plutonium. B8. (page 32)
- [27] H. Grard. *Physique, fonctionnement en sûreté des REP : Le réacteur en production*. EDP Sciences, 2014. (page 32)
- [28] J.M. Delhayé, M. Giot, L. Mahias, P. Raymond, and C. Renault. *Thermohydraulique des réacteurs*. EDP Sciences, 2013. (page 35)
- [29] D. Laux. *Caractérisation mécanique de combustible nucléaires à fort taux de combustion par méthodes micro-acoustiques*. Université de Montpellier II, Thèse, 2002. (page 35), (page 57), (page 89)
- [30] R.J. White. The development of grain-face porosity in irradiated oxide fuel. 325 :61–77. (page 36)
- [31] P. Papon. *L'énergie à l'heure des choix*. Belin, 2007. (page 36)
- [32] D. Baron, M. Kinoshita, P. Thevenin, and R. Largenton. Discussion about hbs transformation in high burn-up fuel. 41. (page 36), (page 37)
-

-
- [33] International Atomic Energy Agency IAEA. Waterside corrosion of zirconium alloys in nuclear power plants. (page 39)
- [34] M. HE. *Caractérisation du comportement à rupture des alliages de zirconium de la gaine du crayon combustible des centrales nucléaires dans la phase post-trempe d'un APRP (Accident de Perte de Réfrigérant Primaire)*. École nationale supérieure des mines de Paris, Thèse, 2012. (page 39)
- [35] C. Clément, M. Michel, M. Snadrine, G. Gaëlle, L. Frédéric, P. Loana, H. Karine, Z. Isabelle, F. Laurent, and C. Sébastien. Micro-raman analysis of the fuel-cladding interface in a high burnup pwr fuel rod. 495 :392–404. (page 40), (page 84)
- [36] C. Ciszak. *Etude l'accrochage pastille-gaine des crayons combustibles des réacteurs à eau pressurisée*. Université Bourgogne Franche-Comté, Thèse, 2017. (page 40), (page 84)
- [37] J. L. Moretti. *CA.C .I .U .S. Caméra de type C d'imagerie ultrasonore contribution à son étude et à sa réalisation*. Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, Rapport CEA-R-5074, 1980. (page 46)
- [38] Z. M. Connor, M. E. Fine, J. D. Achenbach, and M. E. Seniw. Using scanning acoustic microscopy to study subsurface defects and crack propagation in materials. 50. (page 46)
- [39] H. Farah. *Etude des Propriétés Mécaniques et de L'atténuation des Ondes de Surface dans le Si Poreux en Utilisant un Capteur à Lentilles Annulaires*. Université de Constantine, Thèse, 2014. (page 47), (page 49), (page 51), (page 52), (page 68)
- [40] B. Clair, G. Despaux, and B. Chanson. Utilisation de la microscopie acoustique pour l'étude des propriétés locales de bois. 57 :335–343. (page 47), (page 68)
- [41] F. AUGEREAU J. ATTAL, G. DESPAUX. *L'AVANCÉE DES TECHNIQUES DE CARACTÉRISATION MICROACOUSTIQUES DANS LE MONDE DES MICRO-TECHNIQUES*. 8ème Journées Informatique et Pédagogiques des Sciences Physiques, 1998. (page 47)
- [42] J.P. Lefebvre, P. Lasaygue, C. Potel, and P. Gatignol J.F. Belleval. *L'acoustiques ultrasonore et ses applications, 1ère partie*. 2004. (page 47)
- [43] M. Marchetti. *Propriétés élastiques des combustibles nucléaires sous conditions extrêmes*. Univeristé due Montpellier, Thèse, 2017. (page 47)
- [44] D. Laux, F. Augereau, E. Le Clézio, G. Desapux, J.Y. Ferrandis, and E. Rosenkrantz. Caractérisation de solides ou liquides par méthode de pulse-écho. R4043 V1. (page 49)
- [45] B. Clair, G. Despaux, B. Chanson, and B. Thibaut. Utilisation de la microscopie acoustique pour l'étude des propriétés locales du bois : étude préliminaire de paramètres expérimentaux. 57 :335–343. (page 51), (page 52)
- [46] J. Attal. La microscopie acoustique. R1402. (page 51)
- [47] J.M. Grégoire, S. Serrière, G. Georgesco, F. Jamet, A. Bleuzen, F. Ossant, F. Levasort, F. Tranquart, and F. Patat. Techniques et applications de l'échographie haute résolution non invasive. 87 :1920–1936. (page 52)

-
- [48] M. Wilm. *Etude et réalisation de transducteurs composites pour l'imagerie acoustique et le contrôle non-destructif*. Univeristé Franche-Comté, Thèse, 2004. (page 52)
- [49] G. A. D. Briggs and O. V. Kolosov. *Acoustic Microscopy*. Oxford University Press, New York, 2010. (page 52)
- [50] Onda corportation. *Acoustics properties of solids*. CA :USA. (page 57), (page 89)
- [51] H. Saikouk, D. Laux, E. Le Clézio, B. Lacroix, K. Audic, R. Largenton, E. Federici, and G. Despaux. *Caractérisation de solides ou liquides par méthode de pulse-écho*. (page 57)
- [52] G. Despaux. *Microscopie acoustique à champ proche en utilisant la phase comme technique de super-résolution*. Université de Montpellier II, Thèse, 1993. (page 66)
- [53] D. L. Folds and C. D. Loggins. *Transmission and reflection of ultrasonic waves in layered media*. 62 :1102–1109. (page 99)
- [54] L.D. Huy. *Contribution à l'étude structurale et vibrationnelle de couches minces de zircone ZrO_2 déposées sur alliage Zy-4*. Univeristé du Maine, Thèse, 2004. (page 99)

Titre : Imagerie par Microscopie Acoustique Haute Résolution en profondeur de la surface interne d'une gaine de crayon combustible de type REP.

Les crayons combustibles au sein des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) sont constitués de pastilles de céramique (UO_2 ou $(\text{U-Pu})\text{O}_2$) 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 subissent les pastilles et la gaine. La connaissance de la nature de ce contact pastille-gaine à chaud, nécessaire pour comprendre les phénomènes et valider les modélisations de l'évolution de l'état de l'interface en fonction du taux de combustion, est accessible aujourd'hui exclusivement à partir de mesures destructives effectuées en laboratoire de haute activité, après retour à froid des combustibles. Pour obtenir un plus grand nombre d'informations sur des zones d'intérêt étendues, ou sur un tronçon de crayon avant refabrication pour ré-irradiation en réacteur expérimental, un moyen de caractérisation non destructif de l'interface pastille-gaine est nécessaire. 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, et en partenariat avec EDF et Framatome, un microscope acoustique adapté aux géométries cylindriques. Le travail mené au cours de cette thèse inclut la conception et l'adaptation d'une tête de mesure sur un banc prototype et la démonstration de la faisabilité de l'acquisition d'images haute résolution (quelques dizaines de microns) sur tubes de gaine, l'enjeu étant de conserver la focalisation sur l'ensemble des zones imagées sur un même tube de diamètre externe de l'ordre de 10 mm et de longueur de 100 à 500 mm. La difficulté à reproduire les conditions de contact pastille-gaine en laboratoire ont orienté le choix des échantillons simulants, élaborés à partir de tubes de gaine avec ou sans zircone et chargés localement de colle. Les acquisitions réalisées sur ces échantillons simulants montrent la capacité de la méthode à détecter les changements de structure de la surface interne de la gaine. La mesure est ainsi sensible à la présence d'une couche de zircone interne d'épaisseur de 10 μm , et à la présence de matériau adhérent à l'intérieur du tube. Ces résultats montrent l'intérêt de poursuivre ces études, pour améliorer grâce à du traitement du signal l'interprétation des images avec pour objectif final l'adaptation de la méthode et sa qualification sur un banc sur crayon irradié.

Mots-clés : *Microscopie acoustique haute fréquence, Imagerie en profondeur Haute-résolution, Crayon combustible, Interaction Pastille-Gaine, Examen non destructif.*

Title : High frequency acoustic microscopy imaging of the inner face of a PWR fuel rod cladding

Pressurized Water Reactor (PWR) fuel rods are made of ceramic pellets (UO_2 , $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ or gadolinium fuel) assembled in a zirconium alloy cladding tube. By design, an initial gap, filled with helium, exists between these two elements. However during irradiation this gap decreases gradually, on the one hand, owing to a variation in cladding diameter, due to creepdown caused by pressure from the coolant, and, on the other hand, increased pellet diameter, due to thermal expansion, and swelling. In hot conditions, during the second or third cycle of irradiation, the pellet/cladding gap is closed. However, during the return to cooler conditions, the gap can reopen. At a high burnup (generally beyond the 3rd cycle of irradiation) an inner zirconia layer of the order of 10 to 15 μm is developed by oxidation leading to a chemical bonding between the pellet and the cladding. This bonding layer may contribute to a non-reopening of the pellet-cladding gap. Currently, only destructive examinations, after cutting fuel rods, allow the visualization of this area, however, they require a preliminary preparation of the samples in a hot cell. This limits the number of tests and measurements on the fuel rods. In this context, the Institute of Electronic and Systems of Montpellier University (IES - UMR CNRS 5214), in collaboration with the Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA), Electricité de France (EDF) and Framatome, is developing a high frequency acoustic microscope adapted to the control and imaging of the pellet/cladding interface by taking into account the complexity of the structure's cladding which has a tubular form. Because the geometrical, chemical and mechanical nature of the contact interface is neither axially nor radially homogeneous, the ultrasonic system must allow the acquisition of 2D images of this interface by means of controlled displacements of the sample rod along both its axis and its circumference. The final objective of the designed acoustic microscope is to be introduced in hot cells.

Key words : *High-frequency acoustic microscopy, Ultrasound, High-Resolution imaging, Fuel rod, Pellet-Cladding interface, Non Destructive Testing.*