

Sujet de thèse CIFRE EDF – CIRIMAT

« Etude du rôle de l'état de surface interne des tubes de générateur de vapeur sur leur relâchement en produits de corrosion en milieu primaire »

1- Contexte de l'étude

Le relâchement des produits de corrosion des tubes des générateurs de vapeur (GV) en alliage base nickel des réacteurs à eau sous pression (REP) est responsable d'une grande partie de la contamination des circuits (circuit primaire principal et circuits auxiliaires) et ainsi de la dose intégrée par le personnel de maintenance lors des arrêts de tranches. Plus précisément, relâché dans le fluide primaire, le nickel 58 des alliages 600/690 s'active sous flux neutronique en cobalt 58 radioactif qui s'incorpore ensuite dans les oxydes en surface des matériaux et contamine ainsi l'ensemble des surfaces. Cette contamination et plus largement les produits de corrosion nécessitent une gestion qui entraîne des conséquences sur la durée des arrêts de tranches et sur la disponibilité de celles-ci.

Afin de comprendre et réduire ce phénomène de relâchement des faisceaux tubulaires des GV dont la surface représente environ 75% de la surface totale des circuits, des travaux ont été entrepris depuis une vingtaine d'années environ par EDF, FRAMATOME et le CEA. EDF R&D s'est d'ailleurs dotée à la fin des années 90 d'un moyen d'essais spécifique, la boucle BOREAL, pour étudier ce phénomène. Des résultats obtenus sur des échantillons modèles ou sur des échantillons industriels d'anciennes fabrications ont révélé un lien entre fabrication, état de surface interne et relâchement des tubes. Cependant, ce lien demeure encore très imprécis. Plus particulièrement, le lien entre l'état de surface et le relâchement ne peut pas, au stade des connaissances actuelles, être quantifié et par conséquent modélisé.

Bien qu'il ait été montré, sur d'anciennes fabrications des tubes de GV, l'influence de certaines étapes de fabrication sur l'état de surface interne et sur le relâchement des tubes, la compréhension fine des mécanismes mis en jeu et leur quantification échappent encore. Pour les fabrications les plus récentes, les quelques dernières caractérisations réalisées sur ce sujet ne permettent pas d'expliquer la diversité de comportement observé de ces tubes en laboratoire sur boucle ou en exploitation. Ces caractérisations permettent néanmoins de dégager de nouveaux axes d'études sur les caractéristiques d'état de surface à prendre en considération ainsi que sur les paramètres de fabrication à investiguer.

2 – Objectifs et verrous scientifiques de l'étude

L'objectif de la thèse CIFRE ici proposée sur l'étude du rôle de l'état de surface interne des tubes de GV en alliage 690 sur leur comportement au relâchement est double. Il vise dans un premier temps à mieux comprendre et quantifier le lien entre l'état de surface interne et le relâchement des tubes afin de mieux modéliser le phénomène et d'identifier des critères sur l'état de surface interne des tubes de GV qui garantiraient un bon comportement des tubes en exploitation. Il ambitionne dans un second temps à mieux comprendre le lien état de surface interne / fabrication afin d'optimiser certains paramètres de fabrication des tubes de GV.

Plusieurs paramètres interviennent dans la notion d'état de surface interne des tubes et d'après les informations/données de la littérature, deux paramètres d'état de surface dont leur influence n'est à ce jour pas maîtrisée nécessitent d'être investigués. Il s'agit de :

- l'écrouissage (densité de dislocations, épaisseur de surface affectée) ;
- les impuretés d'aluminium et de titane (taux de recouvrement, nature chimique, répartition en profondeur).

3 – Démarche scientifique adoptée

Le travail de thèse sera essentiellement un travail expérimental, réalisé selon deux grands axes de recherche menés en parallèle.

D'un côté, le/la candidat/candidate cherchera à caractériser finement la surface interne, à l'état de réception, de plusieurs tubes de GV de fabrication différente qui ont déjà été testés en boucle BOREAL et pour lesquels les cinétiques de relâchement sont disponibles. Les observations, analyses et mesures seront faites à l'échelle microscopique et à l'échelle nanoscopique à l'aide de diverses techniques (profilométrie laser, MEB-FEG, MET et techniques associées, EBSD, XPS). En préalable à ces examens, un travail de préparation voire de mise au point de méthodes de préparation des échantillons sera vraisemblablement à effectuer. Le/la candidat/candidate cherchera également à caractériser finement par MET et techniques associées, des analyses TOF-SIMS étant également déjà disponibles, la couche d'oxydes formée sur ces tubes de GV déjà testés en boucle ainsi que le matériau sous-jacent afin de préciser le lien existant entre état de surface interne / oxydation / relâchement.

D'un autre côté, le/la candidat/candidate établira et réalisera un programme d'essais spécifiques en boucle BOREAL (et/ou autres moyens d'essais disponibles à EDF R&D) sur des tubes dit modèles, élaborés en laboratoire ou directement par un tubiste afin de déterminer et quantifier le rôle des paramètres d'état de surface considérés.

Le/la candidat/candidate cherchera enfin, à l'aide des différentes données acquises, à améliorer la modélisation du relâchement des tubes de GV en considérant l'aspect matériau qui n'est intégré à ce jour dans aucune des modélisations initiées par EDF R&D, seules les conditions physico-chimiques du fluide primaire sont prises en compte. D'un point de vue industriel, ces résultats devront permettre de proposer, des critères d'état de surface interne des tubes de GV en vue d'appréhender en exploitation, dans le cas d'une tranche nucléaire après remplacement des générateurs de vapeur ou dans celui d'une nouvelle tranche nucléaire, leur comportement au relâchement.

4 – Organisation

Le travail de thèse sera effectué dans le cadre d'un partenariat entre EDF R&D, Département Matériaux et Mécanique des Composants (MMC), et le Centre Inter-universitaire de Recherche et d'Ingénierie des MATériaux - CIRIMAT (Equipe MEMO (Mécanique, Microstructure, Oxydation, Corrosion)).

L'encadrement de la thèse sera assuré par :

- Lydia Laffont, directrice de thèse, Maître de conférences – HDR, CIRIMAT – ENSIACET
- Florence Carrette, encadrante industrielle, EDF R&D
- Bruna Martin-Cabanas, co-encadrante industrielle, EDF R&D

La majeure partie du travail (70 – 80 %) sera menée au sein des laboratoires du site EDF Lab Les Renardières (Moret sur Loing - 77), l'autre partie sera conduite sur le site du CIRIMAT – ENSIACET (Toulouse/Labège - 31). Des déplacements à Toulouse seront donc à prévoir.

Le début de la thèse est prévu pour l'automne 2023, octobre/novembre. Sa durée est de 3 ans.

Formation souhaitée : Le/la candidat/candidate devra avoir une formation en science et génie des matériaux métalliques, avec des connaissances en corrosion, oxydation, diffusion à haute température ainsi que des notions d'utilisation de divers outils de caractérisation (MEB/EDS, MET, analyses TOF-SIMS, ...). Il/elle devra avoir également une capacité à rédiger des rapports/synthèses ainsi que celle à travailler en autonomie et en équipe

Candidature :

- Envoyer un CV, une lettre de motivation et des noms et coordonnées de référents à contacter à lydia.laffont@ensiacet.fr, florence.carrette@edf.fr et bruna.martin-cabanas@edf.fr
- Déposer sa candidature à l'offre de thèse 2023-82046 sur le site internet « EDF Recrute » (<https://www.edf.fr/edf-recrute/offre/detail/2023-82046>) avant le 10 juillet 2023.

Study of the role of the internal surface state of steam generator tubes on their release of corrosion products in primary water

1- Study background

The release of corrosion products from nickel-based alloy steam generator (SG) tubes in pressurised water reactors (PWRs) is the cause of a large proportion of the contamination in the circuits (main primary circuit and auxiliary circuits) and thus of the dose integrated by maintenance personnel during unit shut-down. More accurately, when released into the primary fluid, the nickel 58 in the 600/690 alloys is activated by neutron flux into radioactive cobalt 58, which is then incorporated into the oxides on the surface of the materials, contaminating all the surfaces. This contamination and, more generally, corrosion products have to be controlled, with consequences for unit shutdown times and availability.

2- Objectives and scientific challenges of the thesis

The aim of the CIFRE thesis on the study of the role of the internal surface of alloy 690 tubes on their relaxation behaviour is twofold. Firstly, it aims to better understand and quantify the link between the internal surface and the relaxation of the tubes in order to better model the phenomenon and identify criteria for the internal surface of SG tubes that would guarantee good tube behaviour in operation. The second aim is to gain a better understanding of the link between internal surface and tube manufacturing in order to optimise some manufacturing parameters for SG tubes.

Several parameters are involved to describe the internal surface state of tubes, and according to the data in the literature, two surface parameters whose influence is not yet fully understood have to be investigated. These are :

- strain hardening (dislocation density, affected surface thickness) ;
- aluminium and titanium impurities (coverage rate, chemical nature, depth distribution).

3- Scientific approach adopted

The thesis work will essentially involve experimental work, carried out in two main areas of research in parallel.

On the one hand, the candidate will finely characterise the internal surface, in the as-received state, of several GV tubes of different manufacture that have already been tested in the BOREAL loop and for which release kinetics are available. Observations, analyses and measurements will be carried out at microscopic and nanoscopic scales using various techniques (laser profilometry, FEG-SEM, TEM and associated techniques, EBSD, XPS). Prior to these examinations, work is likely to be required on the preparation and even the development of sample preparation methods. The candidate will also characterise in detail, using TEM and associated techniques (TOF-SIMS analyses are also already available), the oxide layer formed on these GV tubes that have already been tested in a loop, as well as the underlying material, in order to clarify the existing link between the state of the internal surface / oxidation / release.

On the other hand, the candidate will establish and carry out a programme of specific tests in the BOREAL loop (and/or other test facilities available to EDF R&D) on so-called model tubes, developed in the laboratory or directly by a tubemaker, in order to determine and quantify the role of the surface state parameters.

Finally, using the various data acquired, the candidate will seek to improve the modelling of the release of SG tubes by taking into account the material aspect, which has not been included in any of the modelling studies initiated by EDF R&D, as only the physico-chemical conditions of the primary fluid are taken into account.

4- Organisation, management and application

The thesis work will be carried out as part of a partnership between EDF R&D, Materials and Component Mechanics Department (MMC), and the Inter-University Centre for Materials Research and Engineering, CIRIMAT (MEMO team (Mechanics, Microstructure, Oxidation, Corrosion)).

The thesis will be supervised by²:

- Lydia Laffont, thesis supervisor, Senior Lecturer - HDR, CIRIMAT - ENSIACET
- Florence Carrette, industrial supervisor, EDF R&D
- Bruna Martin-Cabanas, industrial co-supervisor, EDF R&D

Most of the work (70 - 80%) will be carried out in the laboratories of the EDF Lab Les Renardières site (Moret sur Loing - 77), the other part will be carried out on the CIRIMAT - ENSIACET site (Toulouse/Labège - 31). Travel to Toulouse will therefore be required.

The thesis is due to start in autumn 2023, in October/November. It will last 3 years.

Preferred training: The candidate should have a background in the science and engineering of metallic materials, with knowledge of corrosion, oxidation and high-temperature diffusion, as well as an understanding of the use of various characterisation techniques (SEM/EDS, TEM, TOF-SIMS analyses, etc.). He/she must also be able to write reports/syntheses and work independently and as part of a team.

Application:

- Send a CV, covering letter and names and contact details of referees to lydia.laffont@ensiacet.fr, florence.carrette@edf.fr and bruna.martin-cabanas@edf.fr
- Apply for thesis vacancy 2023-82046 on the "EDF Recrute" website (<https://www.edf.fr/edf-recrute/offre/detail/2023-82046>) before 10 July 2023.