



HAL
open science

Interaction Laser-UO₂: vers une simulation du chargement thermique d'un accident de réactivité (RIA) à l'échelle du laboratoire

Thibault Vidal

► **To cite this version:**

Thibault Vidal. Interaction Laser-UO₂: vers une simulation du chargement thermique d'un accident de réactivité (RIA) à l'échelle du laboratoire. Optique / photonique. Ecole Centrale Marseille, 2020. Français. NNT: 2020ECDM0005 . tel-03145769

HAL Id: tel-03145769

<https://theses.hal.science/tel-03145769>

Submitted on 18 Feb 2021

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.

École Doctorale : Physique et Sciences de la matière (ED352)

Institut Fresnel - UMR 7249

THÈSE DE DOCTORAT

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'ÉCOLE CENTRALE de MARSEILLE

Discipline : Physique & Sciences de la matière

**Interaction Laser- UO_2 : Vers une simulation du
chargement thermique d'un accident de
réactivité (RIA) à l'échelle du laboratoire**

par

VIDAL Thibault

Directeurs de thèse : GALLAIS Laurent, PONTILLON Yves

Soutenue le 30 septembre 2020

devant le jury composé de :

BERTHE Laurent	Directeur de recherche	Examineur
DELAPORTE Philippe	Directeur de recherche	Examineur
GALLAIS Laurent	Professeur	Directeur de thèse
GIORGIO Suzanne	Professeure	Examinatrice
KONINGS Rudy J.M.	Directeur de recherche	Rapporteur
PILUSO Pascal	HDR	Invité
PONTILLON Yves	Directeur de recherche	Invité
SIMON Patrick	Directeur de recherche	Rapporteur

Résumé

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre général des études sur les combustibles nucléaires actuels et futurs, notamment leur comportement sous des charges thermiques représentatives des conditions de type RIA (Reactivity Initiated Accident) dans les réacteurs nucléaires. Jusqu'à présent, ces études sont réalisées grâce à des expériences intégrales dédiées menées en réacteurs avec le coût et les contraintes correspondantes. Au cours de nos travaux, nous avons étudié la possibilité de développer une plateforme expérimentale à l'échelle du laboratoire, capable de soumettre des combustibles nucléaires irradiés et des assemblages de gaines de combustible à des tests thermiques à très hautes températures (au-dessus de 2000°C) avec un contrôle précis des gradients thermiques et des dynamiques temporelles, et couplée à terme à une analyse des rejets de gaz et de produits de fission, et à la cinétique d'évolution de la microstructure et de la fragmentation du combustible. Pour atteindre cet objectif, des travaux prospectifs ont été menés au cours de cette thèse dans le cadre d'une collaboration entre l'Institut Fresnel, qui a apporté son expertise dans le domaine des interactions laser / matériau à haute puissance et de l'instrumentation optique, et du CEA/IRENE, avec une expertise dans les traitements thermiques des combustibles irradiés, qui a permis de définir les expériences pertinentes et compatibles avec une possibilité d'intégration dans un laboratoire de haute activité.

Suite à des investigations numériques préliminaires, un concept basé sur l'utilisation d'un laser de puissance a été proposé et mis en œuvre, tout d'abord sur un matériau postiche (du graphite de type EDM3) puis sur de l' UO_2 . Nous montrons dans ce mémoire que l'approche proposée permet de reproduire précisément les gradients thermiques caractéristiques d'un RIA, sous réserve que l'échantillon étudié soit suffisamment fin (sub-millimétrique), et que le modèle numérique développé permet de reproduire très fidèlement les observations expérimentales et s'avère être un outil extrêmement utile pour préparer et interpréter les essais. Nous avons ainsi pu démontrer la pertinence et la faisabilité de l'approche proposée qui permettra peut-être à l'avenir de ramener certaines études de sûreté nucléaire du niveau du réacteur à l'échelle du laboratoire pour fournir des données expérimentales cruciales pour la validation des modèles physiques mis en œuvre dans les codes de performance du combustible nucléaire.

Abstract

This project falls within the general context of investigations on current and future nuclear fuels, particularly their behaviour under thermal loads representative of RIA (Reactivity Initiated Accident) type conditions in nuclear reactors. Up to now, these studies are performed thanks to dedicated integral experiments conducted in-pile (i.e. in Materials Test Reactor) with the corresponding cost and constraints. The present work aims to develop an experimental platform, at a laboratory scale, that can submit irradiated nuclear fuels and fuel cladding assemblies to annealing tests involving very high temperatures ($> 2000^{\circ}\text{C}$) with control of thermal gradients and temporal dynamics, coupled with analysis of gas and fission product releases, micro structure evolution kinetics and fuel fragmentation.

To reach such objectives, a prospective work was carried out during this thesis within the framework of a collaboration between the Fresnel Institute, which brought its expertise in the field of high power laser/material interactions and optical instrumentation, and CEA/IRESNE with expertise in thermal treatments of irradiated fuels, which has allowed to define relevant and compatible experiments with the possibility of integration into a high activity laboratory.

Following preliminary numerical investigations, a concept based on the use of a high power laser was proposed and implemented, first on a mock-up material (EDM3 graphite) then on UO_2 . We show in this thesis that the proposed approach allows to precisely reproduce the thermal gradients characteristic of an RIA, provided that the sample studied is sufficiently fine (sub-millimeter), and that the numerical model developed allows to reproduce accurately the experimental observations and is proving to be an extremely useful tool for preparing and interpreting tests.

This work should contribute in future to bring nuclear safety studies from the reactor level down to a laboratory scale and should permit, with some further developments, a full real time analysis of the irradiated nuclear fuel behaviour in case of a major mishap, including the release of radioactive gases and particles at high temperature. This will provide crucial experimental data for physical model validation implemented in nuclear fuel performance codes.

Remerciements

Je suis conscient de l'importance de ces prochaines lignes. Il n'est pas évident d'exprimer avec des mots et sur aussi peu de place ma profonde gratitude et mes plus sincères remerciements à l'ensemble des personnes ayant contribué à cette thèse. Mais tout cela n'aurait pas été possible sans vous.

Je remercie l'Ecole Centrale Marseille et le CEA, pour m'avoir offert l'opportunité de travailler sur cette thèse. Ces deux entités ayant été incarnées au jour le jour par Laurent Gallais et Yves Pontillon, mes deux directeurs de thèse. Merci à vous, pour votre encadrement, vos conseils, votre patience, votre soutien aussi. J'aurais appris un nombre inestimable de choses à vos côtés. Merci Laurent, pour ta présence et ta disponibilité quotidienne, elles furent les moteurs de cette thèse. Merci Yves, de m'avoir repéré à ce salon étudiant et de m'avoir offert ce stage et la magnifique aventure qui s'est ensuivie, merci aussi pour ton soutien dans les aspects moins magnifiques de cette aventure.

J'exprime ma sincère reconnaissance à l'ensemble des membres du jury d'avoir accepté de le juger. Je remercie Rudy J.M. Konings et Patrick Simon pour avoir accepté de rapporter cette thèse. Il m'est impossible de ne pas mentionner spécifiquement Giorgio Suzanne, directrice du département Matériaux à Polytech Marseille et membre du jury, c'est un honneur de pouvoir vous prouver une nouvelle fois la qualité de votre enseignement.

A l'Institut Fresnel, je remercie tout d'abord Stefan Enoch et l'ensemble du service administratif (Guylène, Marc, Claire, ...). Je remercie l'ensemble de l'équipe ILM qui m'a accueilli pour presque quatre ans. Certains d'entre vous m'ont conseillé, d'autres m'ont laissé utiliser du matériel, mais tous ont eu un rôle. Merci à Yannick Abautret et Myriam Zerrad pour avoir mis à ma disposition le dispositif avec la sphère intégrante. Merci aux techniciens de l'atelier pour leur patience face à mes demandes et pour leur promptitude à réaliser plusieurs des pièces indispensables à la plateforme expérimentale (courage à vous!). Merci à tous mes collègues de bureau pour avoir supporté mes colères sur mon clavier lorsque COMSOL me jouait des tours. Merci à tous les (ex)-doctorants : Mael, Thomas, Alexandre, Quentin, Charles, Antoine, Camille, Marin, Cyprien et Lilly. Et puis il y a les inclassables : Merci au grand Georges! Merci à Marco Minissale! Merci à Thomas Begou!

Au CEA de Cadarache, je remercie l'ensemble du LAMIR pour votre accueil.

Mes pensées vont particulièrement vers Hélène Capdevila, Jérémy Faucheux, Frédéric Martin, Antoine Dougy et Jérôme Sercombe. Hélène, pour son aide lors des préparations à de nombreuses réunions et présentations, ainsi que pour sa contribution active à percer les arcanes administratifs du CEA. Jérémy qui aura pendant trois ans mené une aventure parallèle à la mienne. Il aura démontré ses qualités d'ingénieur à plus d'une reprise, merci pour la chambre expérimentale et merci pour ta bonne humeur. Merci à Frédéric pour son aide sur DURANCE/MERARG (désolé pour le four). Merci à Antoine, sans lui la circulation de gaz de Chaucolase ne serait pas ce qu'elle est. Enfin, en dernier mais pas pour son importance, Jérôme qui aura réussi à apporter à lui tout seul un aspect thermomécanique à cette thèse, son expertise d'ALCYONE fut un véritable atout. Si je ne devais avoir qu'un regret quant à cette thèse, cela serait de ne pas avoir plus travaillé à ses côtés.

Tout un pan de la thèse a vu le jour grâce à Jean-Luc Rullier, que je remercie chaudement. Merci, pour ces semaines d'expérimentations et de collaboration, j'espère t'avoir apporté ne serait-ce qu'un dixième de tout ce que tu m'as apporté. Ta démarche scientifique, ta rigueur et ton engagement sont un exemple pour tout chercheur. Tes campagnes d'expériences m'ont beaucoup apporté, et mon modèle numérique est ressorti grandi de toutes nos rencontres.

Je remercie Andrea Quaini et Stéphane Gossé du CEA Saclay, pour être venu à Marseille avec dans leurs valises, une superbe caméra IR et leur expertise sur l' UO_2 et de sa chauffe par laser. Les résultats finaux de cette thèse n'auraient pas été possibles sans vous.

Comment ne pas remercier mes amis pour leur soutien tout au long de cette odyssee, que ce soit autour d'un verre, en bas d'un mur d'escalade, les deux et pour tous les autres moments partagés. Chloé, Bruce, Laura, Vincent et Alexis gros big up. Et tous les autres <3 (dont le nom n'est pas mentionné mais que j'aime quand même énormément ou au moins un peu).

Je remercie du fond du cœur ma famille. A ma grand-mère, à ma sœur Mahéva (qui m'a montré la voie du doctorat), à Marie-Jo. Et à mon père, dont le soutien a été indéfectible et ce depuis le tout début, merci papa! Sans toi, non seulement je n'aurais pas réussi mais je n'aurais jamais pu commencer...

Je dédie cette thèse à mes deux grands-pères.

Sommaire

Résumé	2
Abstract	3
Remerciements	5
Sommaire	7
Introduction	11
I Contexte et positionnement de l'étude	12
A Introduction	13
B Les Réacteurs à Eau Pressurisée	15
C Fonctionnement nominal : comportement de la céramique d' UO_2	20
D Description détaillée des études RIA	31
E Chauffage laser appliqué à l'étude des matériaux nucléaires	37
F Synthèse et conclusions	44
II Modèle numérique d'interaction laser /UO_2– Application au dimensionnement des expériences RIA.	46
A Introduction	47
B Propriétés de l' UO_2	47
C Présentation du modèle numérique	59
D Mise en pratique des expériences	75
E Conclusion	85
III Développement de la plateforme expérimentale	86
A Introduction	87
B Le dispositif expérimental	88
C Méthodes et procédures expérimentales	106
D Conclusion	113
IV Études d'un matériau modèle : le graphite EDM3	114
A Introduction	115
B Propriétés du Graphite EDM-3	115
C Expériences de chauffage Laser du Graphite EDM-3	127
D Confrontation Expérimentation/Simulation	147

E	Conclusion	151
V	Vers la reproduction de la thermique d'un RIA sur l'UO_2 par chauffage laser	153
A	Introduction	154
B	Procédé de mise en forme d'un faisceau laser gaussien annulaire . .	154
C	Validation des concepts de chauffe RIA sur du graphite EDM-3 . .	172
D	Application des concepts de chauffe RIA sur UO_2	183
E	Conclusion	208
	Conclusion	212
	ANNEXES	213
A	Propriétés de la Zircone, du Zircaloy et du Saphir	214
A	Zircone	214
B	Zircaloy	220
C	Saphir	223
B	Equation du Faisceau Gaussien Annulaire	227
C	Tableau des échantillons d'EDM	229
D	Post traitement de l'émissivité (Matlab)	230
E	Macro Fiji	232
F	Résultats des chauffes sur EDM dans la configuration finale	234
	Bibliographie	241

Introduction

La population mondiale augmente quotidiennement, la Terre ayant accueilli le « bébé 7 milliards » en octobre 2011 et les estimations les plus basses prévoient une population de 8 milliards avant 2025 [1]. Avec une plus grande population, les besoins de l'humanité ont augmenté, qu'ils soient « primaires » comme l'alimentation et l'accès à de l'eau potable ou « secondaires » avec par exemple les terres rares et les énergies fossiles. Ces dernières exploitant le pétrole, le gaz et le charbon, ont amené un record mondial en terme d'émission de CO₂ [2]. Dans un monde où chaque individu consomme de plus en plus d'énergie et où la pollution est devenue un des enjeux centraux des plus grands pays, l'accent est mis de plus en plus sur des sources d'énergies plus adéquates. L'énergie nucléaire est l'une des sources les moins émettrices en CO₂ qui, exploitable à grande échelle, couvre 10% de l'utilisation mondiale d'électricité [3]. Malgré l'essor des énergies alternatives, des pays continuent d'investir dans le nucléaire, avec de grands programmes de déploiement de centrales, par exemple, en Inde [4], en Chine [5] mais aussi chez nos voisins européens avec la Finlande [6] ou la République Tchèque [7].

La filière du nucléaire génère de l'électricité mais aussi des inquiétudes. En effet, l'accident de la centrale de Tchernobyl, et plus récemment celui de Fukushima, ont marqué fortement l'histoire du nucléaire et l'opinion publique. Lors d'un accident grave, la rupture des systèmes de confinement peut avoir des conséquences radiologiques importantes sur l'environnement et la population proche.

Ainsi la sûreté des réacteurs est un enjeu majeur de la filière électronucléaire et occupe une place importante dans sa R&D. En France, le Commissariat à l'Energie Atomique et aux énergies alternatives (CEA) est l'organisme chargé par l'Etat d'étudier les différents aspects du nucléaire (défense, énergétique, science de la matière et de la vie). Dans ce cadre, le CEA étudie le fonctionnement en condition normale et en condition dégradée des réacteurs à eau pressurisée (REP), qui est le type de réacteurs composant la totalité du parc électronucléaire français [8].

L'étude d'un accident nucléaire est complexe et se réalise à plusieurs échelles : une pastille de combustible, un crayon de combustible, l'ensemble de la cuve du réacteur. Il existe trois grands types d'études sur cette thématique :

- Les essais intégraux dédiés, où un réacteur de test est utilisé pour reproduire de manière contrôlée et instrumentée certains paramètres d'un accident ;
- Les modèles numériques, ou codes de calculs, utilisant des simulations par ordinateurs ;
- Les essais spécifiques, réalisés dans un laboratoire via une plateforme expérimentale et se concentrant sur certain(s) aspect(s) d'un accident à une échelle

réduite.

Ce troisième moyen d'étude nécessite des développements propres pour répondre à chaque besoin précis et c'est dans ce contexte que s'inscrit le travail décrit dans ce document. L'objectif de cette thèse est de permettre l'étude d'évènements de type « Reactivity Initiated Accident (RIA - accident de réactivité) » en laboratoire via la reproduction du chargement thermique de l'accident sur un échantillon de combustible, à l'aide de techniques utilisant des lasers de puissance.

Lors d'un RIA [9], une augmentation rapide de la température s'effectue dans le combustible du fait du dépôt de puissance inhérent à ce phénomène. L'enchaînement des évènements peut entraîner une rupture de la gaine de combustible et conduire aussi aux relâchements de matériaux radioactifs dans le circuit primaire. Dans les cas les plus graves, de grandes quantités de pastilles de combustibles peuvent être dispersées dans le circuit primaire. Pour empêcher cela, des critères de sécurité prenant en compte la limite d'accroissement d'enthalpie du combustible sont actuellement pris en compte. Pendant un évènement RIA, la distribution de la température dans la pastille présente un maximum localisé proche de sa périphérie [10]. L'augmentation de température (au-dessus de 2000°C) correspondante se produit en quelques dizaines de millisecondes.

Afin d'étudier l'impact de cet accident particulier, des programmes expérimentaux ont été lancés au début des années 1990 en France, au Japon et en Russie. Ces essais réalisés dans des réacteurs dit MTR (Materials Testing Reactor), ont pour objectif de vérifier le comportement du combustible irradié dans le cadre d'un évènement RIA. Ces essais fournissent des informations cruciales sur la gaine, le combustible et leur comportement pendant le transitoire.

Par conséquent, jusqu'à présent, les essais intégraux dédiés (type MTR) sont le plus souvent la seule solution pour cette catégorie de R&D. Cela veut dire que le nombre potentiel d'essais qui peuvent être réalisés est très limité que ce soit en termes de coûts ou de complexité. Pour lever ce verrou, le travail présenté dans ce manuscrit vise à explorer un concept pour reproduire les conditions thermiques d'un "RIA" afin d'étudier le comportement du combustible nucléaire dans de telles conditions. Par exemple, il sera possible d'étudier des paramètres très importants tels que la corrélation entre le Relâchement de Gaz de Fission (RGF), la fragmentation de la pastille, l'expansion radiale dans une pastille en fonction du profil thermique appliqué.

L'objectif général correspondant est d'obtenir des résultats complémentaires à ceux obtenus via des essais intégraux dédiés qui étudient la capacité des REP, utilisant du dioxyde d'uranium (UO_2) et du combustible MOX (Mixed OXide) à résister aux rapides transitoires de puissance qui peuvent se produire au cours d'un scénario d'accident [11].

Ce manuscrit sera structuré en cinq chapitres. Le premier chapitre est une présentation détaillée du contexte de l'étude et du positionnement de nos travaux dans le domaine de la sûreté du nucléaire. Nous décrivons le fonctionnement d'un REP et présentons le combustible nucléaire. Par la suite nous donnons une

description d'un RIA et des moyens d'études mis en place à ce jour. Nous montrons les intérêts quant à l'utilisation de techniques laser pour réaliser un chauffage type-RIA sur le Dioxyde d'uranium (UO_2), l'élément composant majoritairement le combustible nucléaire. La dernière partie est une synthèse bibliographique sur l'étude des interactions Laser/combustible nucléaire.

Le chapitre II, est d'une part consacré à la présentation des propriétés des différents matériaux intervenant dans la thèse. L'accent est porté sur les propriétés optiques et thermiques de l' UO_2 . Et d'autre part, nous présentons le modèle thermique utilisant les précédentes propriétés pour simuler l'interaction thermique entre des faisceaux laser et l' UO_2 selon deux scénarios de chauffe visant à reproduire les gradients thermiques d'un RIA.

L'ensemble de la plateforme expérimentale est présenté dans le troisième chapitre. Nous décrivons les lasers utilisés, la chambre à vide et ses porte-échantillons, l'instrumentation et les différentes méthodes et procédures expérimentales mises en place telles que la calibration de l'instrumentation, les outils pour la caractérisation des faisceaux, la boucle de régulation thermique.

Ensuite nous présentons dans le chapitre IV, l'EDM-3, un type de graphite, que nous avons utilisé comme matériau de substitution à l' UO_2 et pour tester et qualifier nos protocoles expérimentaux. Après une description des propriétés de ce matériau sur la base d'une étude bibliographique, nous présenterons les différentes expériences effectuées puis nous comparerons les résultats de nos études au modèle numérique de l'Interaction Laser/matière.

Enfin, le chapitre V sera consacré à la réalisation des chauffes contrôlés par laser visant à s'approcher au plus près des gradients thermiques d'un RIA sur UO_2 . Nous présenterons les aspects techniques, les résultats expérimentaux obtenus et nous confronterons enfin les valeurs obtenues aux simulations et discuterons des résultats obtenus, pour finalement ouvrir la discussion sur les perspectives de ce travail.

I. Contexte et positionnement de l'étude

Sommaire

A	Introduction	13
B	Les Réacteurs à Eau Pressurisée	15
B.1	Description du cœur du réacteur	17
C	Fonctionnement nominal : comportement de la céramique d' UO_2	20
C.1	Conditions d'irradiation	20
C.2	Production de la chaleur	21
C.3	Formation des produits de fission [31]	22
C.4	Evolution de la céramique sous irradiation	25
C.5	Études de sûreté sur les combustibles à fort taux de combustion	30
D	Description détaillée des études RIA	31
D.1	Modèles de défaillance	32
D.2	Aperçu des méthodologies d'étude des RIA	33
D.3	Programmes de simulation	34
D.4	Présentation d'un exemple de RIA	35
D.5	Bilan	36
E	Chauffage laser appliqué à l'étude des matériaux nucléaires	37
E.1	Historique de l'utilisation de Laser sur combustibles	37
E.2	Mesure de propriétés physico-chimiques à haute température	39
E.3	Analyses sans contact	40
E.4	Études mécaniques	42
E.5	Intégration en laboratoire haute activité	43
F	Synthèse et conclusions	44

A. Introduction

Selon N. Mazzucchi, auteur de *Energie, Ressources, technologies et enjeux de pouvoir* [12], « *l'énergie est au cœur de nos civilisations, de nos économies et même de nos vies* ». En effet, depuis la découverte et la *maîtrise* du feu il y a environ 500 000 ans, la production, l'exploitation et la maîtrise de l'énergie ont joué un rôle considérable dans l'histoire de l'Homme [13]. Il existe de nombreux moyens de produire et d'exploiter de l'énergie. A partir du XVIIIe siècle, le charbon devient la principale source d'énergie servant aussi bien à faire fonctionner les machines à vapeur qu'à chauffer les foyers ou encore à produire du gaz d'éclairage [13]. Puis, la découverte au XIXe siècle de l'électricité et du pétrole a marqué un tournant dans l'histoire industrielle. Finalement, le gaz naturel, exploité à partir de 1900, et l'énergie nucléaire ont élargi un peu plus le champ des possibles en termes de production d'énergie. L'électricité occupe une place particulière dans la filière énergétique. À la fois vecteur d'énergie et forme d'énergie, l'électricité a été découverte et exploitée il y a peu à l'échelle de l'Homme. Telle que nous l'utilisons chaque jour, l'électricité est obtenue artificiellement. Aujourd'hui, on distingue 3 grandes types d'énergies à partir desquelles il est possible de produire de l'électricité : les énergies carbonées dites fossiles, les énergies renouvelables (éolien, solaire, hydraulique, ...) et le nucléaire qui fait figure d'énergie décarbonée non renouvelable. À l'heure où le secteur de l'énergie rencontre un certain nombre de défis majeurs, l'étude des différentes solutions techniques de production et d'exploitation d'électricité est indispensable pour établir un plan énergétique de court-moyen-long terme. Dans ce contexte, l'énergie nucléaire a une place toute particulière.

Si cette source d'énergie a pu apparaître de façon naturelle sur la terre, il y a 1,95 milliards d'années par exemple à Oklo en Afrique [14], l'énergie nucléaire n'a été découverte par l'Homme que récemment. Tout commence en 1896, lorsque Henri Becquerel, physicien français, s'intéresse à l'uranium. Il découvre alors que l'émission de rayonnement est propre à cet élément atomique, et non à la fluorescence. Il met alors en évidence la radioactivité naturelle. Toutefois, il faut attendre Pierre et Marie Curie pour comprendre l'apport de cette découverte. En 1903, par une note à l'académie des sciences, ils déclarent avoir « fabriqué » un atome radioactif qui n'existait pas dans la nature. En 1942, Enrico Fermi fait diverger la première pile atomique. Le premier jour ce réacteur fonctionna à 0,5 W et les jours suivants à quelques centaines de watts (le réacteur n'étant pas équipé de dispositif d'évacuation de la chaleur, il n'était pas possible d'augmenter la puissance). Cette expérience n'avait alors pas pour but de produire de l'électricité mais de montrer de manière expérimentale que la maîtrise de la réaction en chaîne est possible. À partir de ce moment, les États-Unis se lancent dans un vaste programme concernant l'énergie nucléaire. Ce programme connu sous le nom de « Manhattan Project » est conduit pour un objectif militaire : mettre au point une arme de destruction massive. Il faut attendre 1954 pour que la première centrale nucléaire électrogène voit le jour

B. Les Réacteurs à Eau Pressurisée

Le principe d'une centrale électrique est de faire tourner à grande vitesse une turbine qui, couplée à un alternateur, produira de l'électricité. La spécificité d'une centrale nucléaire réside dans son mode de production de la chaleur qui va générer la vapeur nécessaire à l'entraînement de la turbine. La vapeur est obtenue en faisant chauffer de l'eau dans une chaudière (le réacteur nucléaire) qui utilise la chaleur dégagée par la fission de noyaux d'uranium et de plutonium.

La figure I.2 schématise les éléments principaux d'un REP qui se compose de trois circuits.

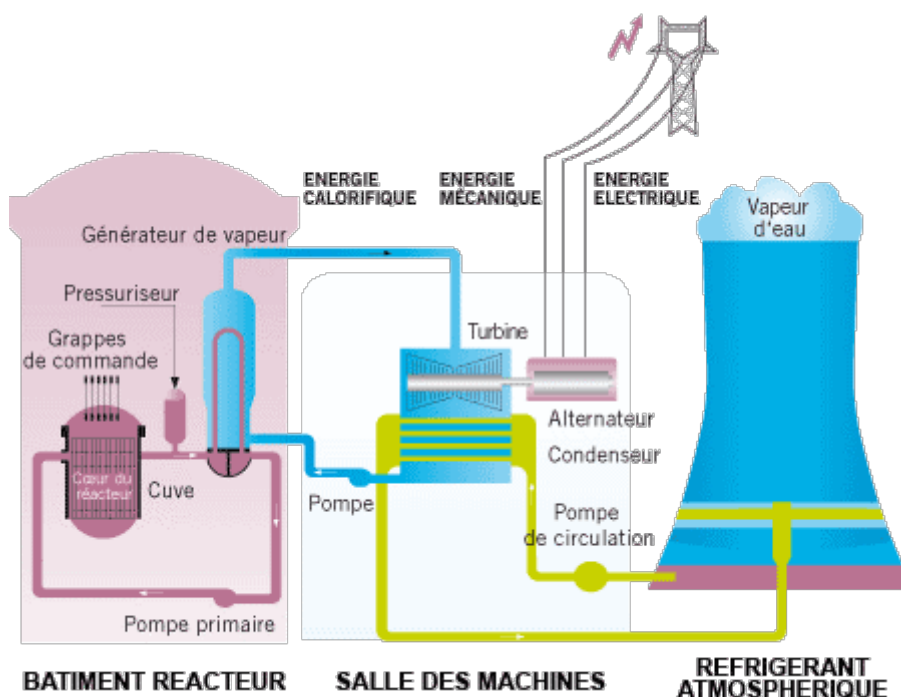


FIGURE I.2. – Schéma de principe de fonctionnement d'un REP [19]

Le circuit primaire produit la chaleur par la fission des atomes d'uranium et/ou de plutonium (fig. I.3) à l'intérieur des éléments combustibles, et la transfère, par échange thermique, au circuit secondaire via le générateur de vapeur. En son sein, l'eau du circuit secondaire se transforme en vapeur. Cette vapeur est collectée par les tuyauteries du circuit secondaire et alimente la turbine couplée à un alternateur pour produire l'électricité. L'électricité transite ensuite sur les lignes à très haute tension à partir du transformateur. L'eau du circuit tertiaire refroidit le circuit secondaire à travers un condenseur alimenté par de l'eau en provenance de la mer ou d'un fleuve. Cette eau peut également être refroidie au contact de l'air dans un aéroréfrigérant. Les trois circuits opèrent des échanges thermiques entre eux tout en restant indépendants, pour éviter toute dispersion de substance radioactive à l'extérieur de la centrale.

Le cœur du réacteur est le siège de la production d'énergie, il contient les éléments lourds fissiles. La fission des noyaux lourds (cf. fig. I.3) libère de l'énergie et des neutrons, qui eux même sont susceptibles de provoquer de nouvelles fissions, qui à leur tour libéreront des neutrons et de l'énergie. Ces fissions successives engendrent ainsi une réaction en chaîne.

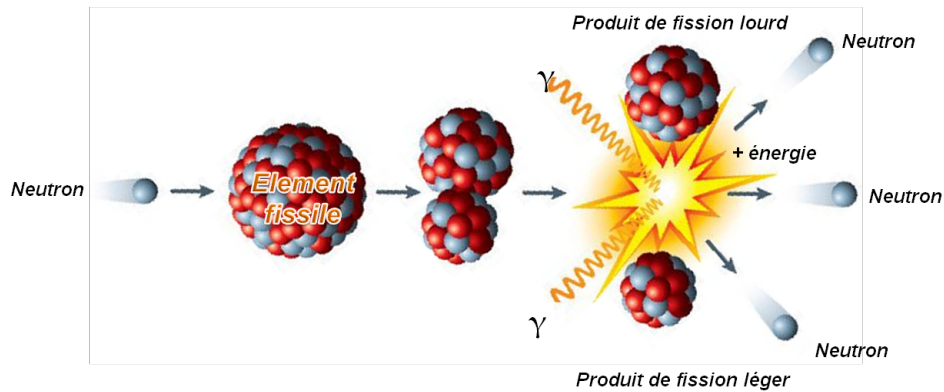


FIGURE I.3. – Principe de la fission d'un atome d'uranium [19]

Dans un réacteur nucléaire, la réaction en chaîne est maîtrisée pour maintenir un rythme de fissions constant. C'est à dire que sur les deux ou trois neutrons libérés lors d'une fission, seul l'un d'entre eux en provoque une nouvelle, les autres étant capturés (absorbeurs de neutrons) pour assurer une réaction de fission entretenue (fig. I.4).

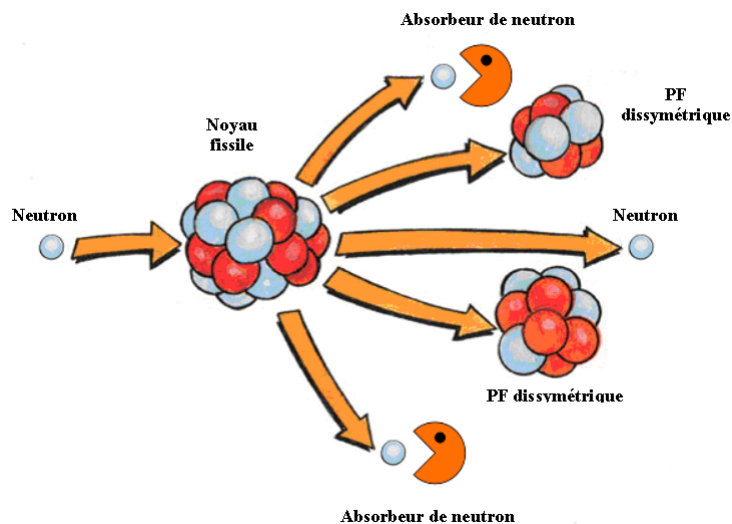


FIGURE I.4. – Principe d'une réaction de fission entretenue. [19]

B.1. Description du cœur du réacteur

Le cœur du réacteur produit de l'énergie grâce à la fission des atomes d'uranium et/ou de plutonium. Le combustible est confiné dans des crayons qui sont eux-mêmes intégrés dans des assemblages complexes dimensionnés afin de contenir efficacement les contraintes de déformation des crayons et de favoriser les réactions de fission et les échanges thermiques avec le circuit primaire. Le cœur d'un REP a une hauteur d'environ 4 mètres pour un diamètre de 3,05 mètres et contient environ 100 tonnes de combustible.

B.1.a. L'assemblage combustible

Le cœur est constitué de 157, 193 ou 205 assemblages combustibles en fonction de la puissance du réacteur [19]. Chaque assemblage (figure I.5a) est constitué de 264 crayons et 25 tubes guides arrangés en réseau à maille carrée (17×17 emplacements) dans une structure assurant notamment leur maintien mécanique. Cet arrangement géométrique permet la circulation de l'eau entre les crayons et donc l'évacuation hors du cœur de la chaleur engendrée par la fission. Dans un réacteur à eau sous pression, l'eau peut circuler transversalement aux assemblages. Les assemblages pour REP sont constitués d'une structure comprenant un pied, une tête (éléments appelés embouts inférieur et supérieur) et des tubes guides sur lesquels sont fixées les grilles de maintien des crayons combustibles.

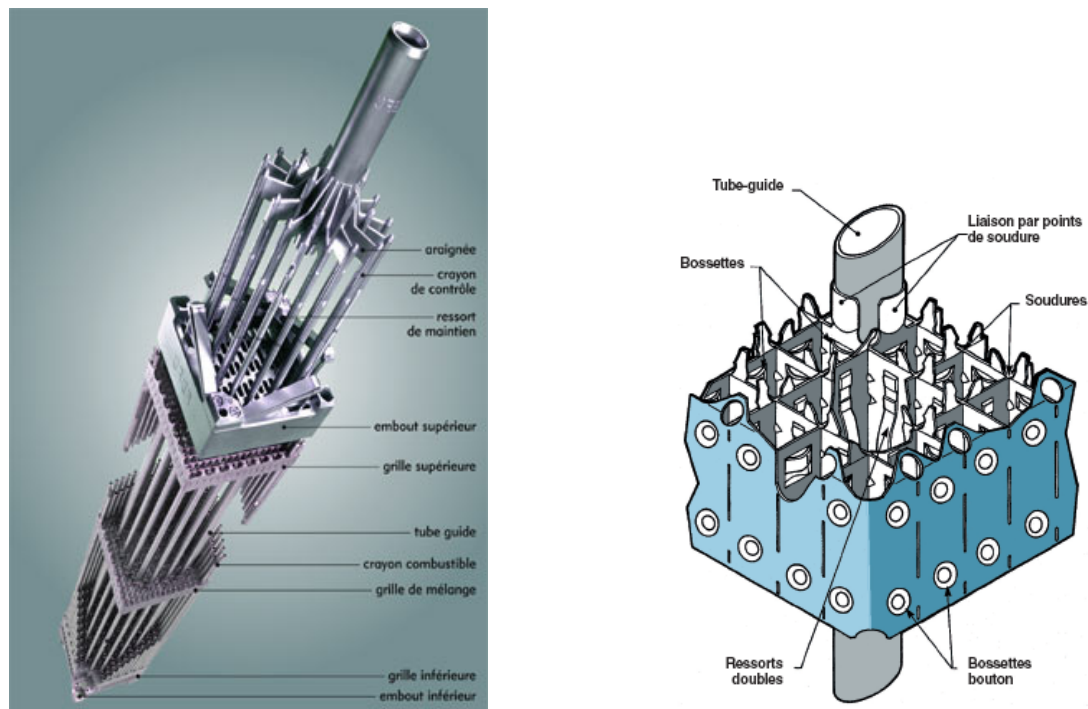


FIGURE I.5. – a) Assemblage combustible. b) Schéma d'une grille d'assemblage [19]

Les crayons absorbants des grappes de contrôle coulisent dans les tubes guides. Un des tubes guides est réservé à l'instrumentation du cœur. Les grilles, soudées sur les tubes guides, assurent, à l'aide de ressorts et de bossettes (figure I.5b) le maintien et l'espacement des crayons combustibles [20]. Les assemblages sont répartis en 3 zones d'enrichissement. A la fin de chaque cycle de fonctionnement, qui dure environ 300 jours, la disposition des assemblages est modifiée et ils sont remplacés par tiers ou par quart. Les assemblages neufs sont placés en périphérie du cœur ce qui permet d'homogénéiser sa puissance globale.

B.1.b. Le crayon combustible

Les pastilles sont empilées dans une gaine métallique destinée à confiner les produits de fission, à assurer le maintien mécanique des pastilles, et à évacuer vers le fluide caloporteur la chaleur produite par les réactions nucléaires. L'ensemble, appelé crayon combustible (figure I.6) [20][21], a une longueur d'environ 4 m pour un diamètre extérieur d'environ 9,5 mm et une épaisseur de gaine de 0,57 mm. Le jeu diamétral entre le combustible et la gaine est de l'ordre de $160 \mu\text{m}$ à froid en début de vie du crayon.

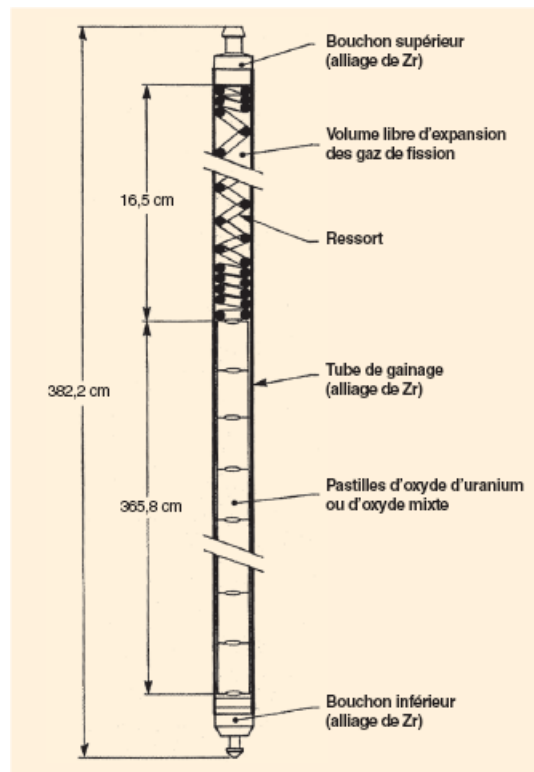


FIGURE I.6. – Schéma d'un crayon combustible (dimensions d'un crayon REP 900 MW). [19]

Outre l'empilement des pastilles et le tube de gainage, ce crayon est constitué de

deux bouchons d'extrémités soudés, d'une chambre d'expansion (ou plenum) destinée à recevoir les gaz de fission relâchés par la céramique au cours de l'irradiation et d'un ressort (dans cette chambre d'expansion) qui maintient en place la colonne combustible. Le crayon est rempli d'hélium sous une pression de l'ordre de 25 bars à froid, de façon à compenser, en partie, la pression externe dans le circuit primaire (155 bars dans un REP). Le matériau de la gaine est un alliage de zirconium [22], choisi pour sa transparence aux neutrons, ses propriétés mécaniques et sa résistance à la corrosion. L'alliage le plus couramment utilisé jusqu'à ce jour en REP était le Zircaloy-4, un alliage de zirconium contenant de l'étain (1,2 - 1,7%), avec un peu de fer (0,2 %), de chrome (0,1 %), et d'oxygène (0,1 %) mais il est actuellement remplacé par de nouveaux alliages de type M5 à base de zirconium – niobium plus résistants à la corrosion.

B.1.c. Le combustible nucléaire

Dans les réacteurs à eau ordinaire, la matière fissile est sous forme d'oxyde polycristallin UO_2 [23] (ou UO_2 - PuO_2 [24] dans le cas du combustible MOX). Le dioxyde d'uranium typique utilisé en REP se présente sous forme de pastilles de l'ordre de 8,2 mm de diamètre et d'une hauteur d'environ 13,5 mm (figure I.7). Ces pastilles sont empilées dans le crayon et possèdent à chaque extrémité un évidement hémisphérique, destiné à accommoder les gonflements lors de l'irradiation en réacteur.

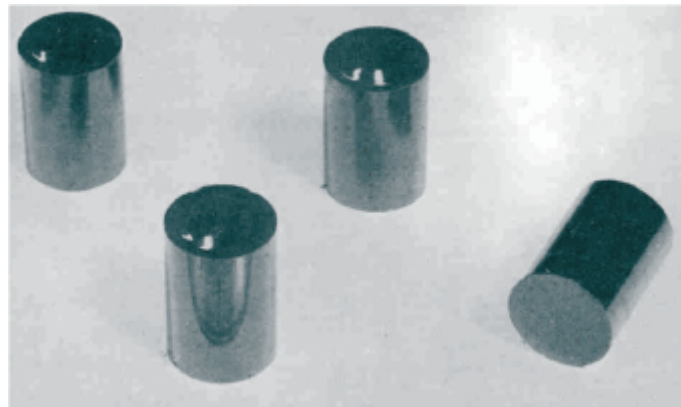


FIGURE I.7. – Pastilles combustibles. [19]

La pastille combustible UO_2 est une céramique obtenue par pressage puis frittage d'une poudre enrichie en uranium 235 [25]. Après fabrication, la densité des pastilles est égale à $95 \pm 0,5\%$ de la densité théorique de l' UO_2 qui a une masse volumique théorique de $10,96 \text{ g/cm}^3$. Il cristallise dans une structure de type fluorine (figure I.8) avec un paramètre de maille cristallin de $5,47 \text{ \AA}$ [26].

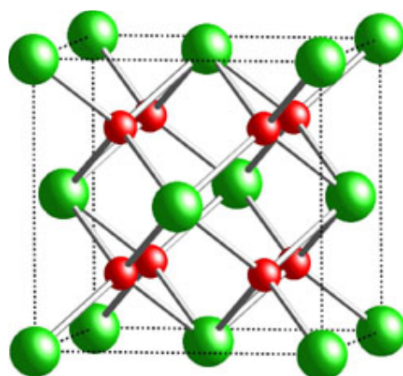


FIGURE I.8. – Structure cristallographique de type fluorine. Les atomes d’uranium occupent les sites signalés en vert, les rouges correspondent aux sites occupés par l’oxygène. [26]

Stable chimiquement et compatible avec l’eau, l’oxyde d’uranium résiste bien à la température et à l’irradiation. L’oxygène de l’oxyde absorbe peu les neutrons, et les cristallites d’oxyde retiennent bien les produits de fission, tout en gardant leur structure cristalline cubique.

C. Fonctionnement nominal : comportement de la céramique d’ UO_2

C.1. Conditions d’irradiation

Dans un cœur REP, la puissance totale reste relativement stable au cours d’un cycle d’irradiation, mais la puissance linéique dans un crayon varie axialement sur la hauteur de la colonne fissile. Intégré sur la durée du séjour en réacteur, la distribution axiale de taux de combustion en fin d’irradiation est relativement uniforme sur une grande partie de la hauteur de la colonne fissile (baisse seulement au voisinage des extrémités hautes et basses et au niveau des grilles). Le taux de combustion au sens propre correspond au pourcentage d’atomes lourds (uranium et plutonium) ayant fissionné et s’exprime en atome pour cent (at.%). Cependant, couramment utilisé pour évaluer la quantité d’énergie thermique par unité de masse de matière fissile obtenue en réacteur entre le chargement et le déchargement du combustible, il est d’usage de l’exprimer pour les REP et les REB (Réacteurs à Eau Bouillante) en mégawatts jour par tonne de noyaux lourds initiaux (MWj/tm). C’est cette unité qui sera utilisée dans ce document. Les crayons combustibles fonctionnent, en régime nominal, à des puissances linéiques moyennes comprises entre 150 et 250 W/cm. Un exemple d’évolution de la puissance linéique moyenne d’un crayon UO_2 qui a subi 5 cycles d’irradiation est présenté sur la figure I.9. L’incrément de puissance au deuxième cycle est lié à un déplacement de l’assemblage

vers le centre du cœur ; sous l'effet de l'épuisement du combustible, la puissance moyenne tend ensuite, logiquement, à diminuer au cours du temps.

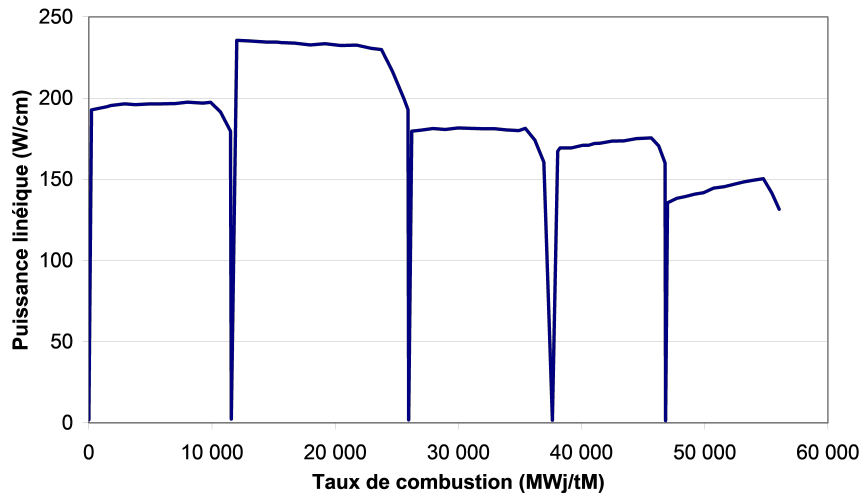


FIGURE I.9. – Exemple d'évolution en fonction du temps de la puissance linéique moyenne d'un crayon UO₂ irradié 5 cycles en REP. [27]

C.2. Production de la chaleur

En réacteur, le principal phénomène intervenant dans le combustible est la fission de noyaux lourds. C'est de ces fissions que découle tout le comportement du matériau. Ces fissions produisent quelques centaines de types de nucléides, en majorité radioactifs et à vies courtes ainsi que de l'énergie, majoritairement sous forme d'énergie cinétique des produits de fission, mais aussi sous forme de rayonnements β et γ . L'énergie cinétique des produits de fission est dissipée sous forme de chaleur pendant l'implantation des produits de fission dans le matériau. Cette implantation se produit par « recul » des produits de fission dans le matériau sur une distance de 5 à 8 μm et conduit à la formation d'un grand nombre de défauts dont la recombinaison dépend de la température du combustible. Très énergétique, la trace laissée par cette implantation est dénommée pointe de fission [28].

La répartition de cette production de chaleur n'est pas homogène dans la pastille. L'énergie dissipée au sein du matériau et les conditions d'échange avec le caloporteur à la surface de la gaine conduisent à un gradient thermique radial élevé dans le combustible (figure I.10). La différence de température entre le centre d'une pastille et sa périphérie, qui varie fortement au cours d'une irradiation (sous l'effet combiné de plusieurs paramètres, notamment des variations de puissance, de la diminution de la conductivité thermique, de la diminution du jeu pastille-gaine et de la formation de couches oxydées en surface de gaine [29][30]), est de l'ordre de 500 à 700 °C.

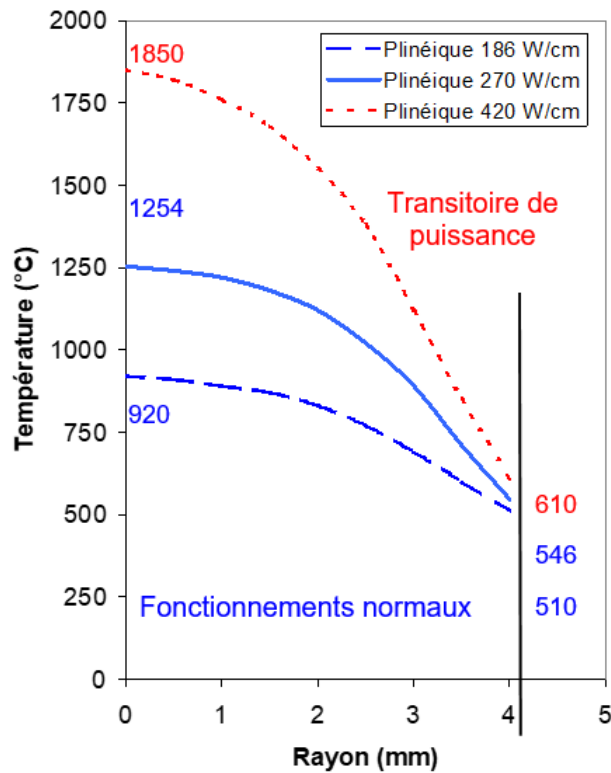


FIGURE I.10. – Représentation du gradient thermique radial dans une pastille combustible.[21]

C.3. Formation des produits de fission [31]

La fission d'un noyau est généralement dissymétrique : elle donne naissance à un fragment "léger" et à un fragment "lourd". La distribution de la masse de ces fragments dépend du noyau qui a subi la fission et de l'énergie du neutron incident [32]. Le rendement d'un produit de fission est le nombre de noyaux de cette espèce obtenu en moyenne pour une fission. La figure I.11 illustre la probabilité d'apparition des produits de fission en fonction de leur nombre de masse. On constate que les noyaux dont le nombre de masse est proche de 95 ou 138 ont la probabilité la plus grande d'être créés à partir d'un noyau d'uranium 235. Il est à noter que le Krypton et le Xénon, respectivement de nombres de masse 85 et 133, sont les produits gazeux qui ont une grande probabilité d'apparition lors de la fission.

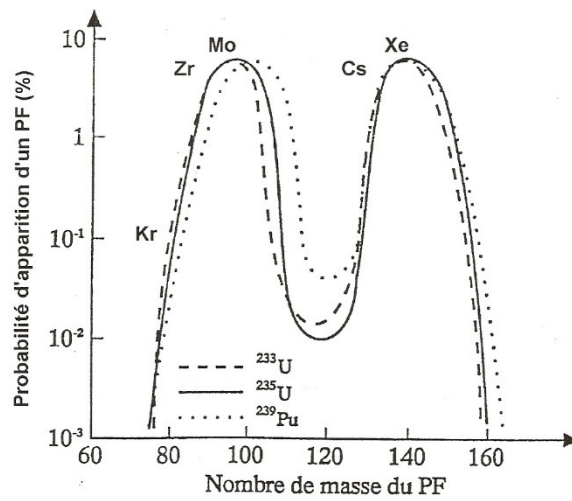


FIGURE I.11. – Probabilité d’apparition des produits de fission issus des isotopes ^{235}U , ^{233}U et ^{239}Pu , en fonction de leur nombre de masse [33]

Les produits de fission n’apparaissent pas toujours sous la même forme dans l’oxyde. La forme chimique des produits de fission dépend de nombreux paramètres comme la quantité relative de chaque produit de fission et sa position dans la pastille, la température du combustible et le potentiel d’oxygène du combustible.

Les produits de fission sont généralement classés en quatre groupes selon l’état chimique majoritaire qu’ils adoptent dans le combustible[19]. Cette distinction est essentielle puisque c’est l’état chimique du composé qui régit son comportement dans le combustible. Quelques produits de fission ainsi que leurs états chimiques correspondant et leur pourcentage massique sont donnés dans le Tableau I. Les produits de fission gazeux et volatils représentent 30% de l’ensemble des produits de fission et les 70% restants se trouvent sous forme solide.

Type	Eléments	% Massique
Gaz rares	Xe	12,7
	Kr	1,1
Inclusions Métalliques	Mo	9,6
	Ru	6,9
	Pd	3,6
	Tc	2,3
	Rh	1,2
	Ag	0,3
	Cd	0,2
	Sn	0,2
	Inclusions Oxydes	Zr
Mo		9,6
Ba		4,4
Sr		2,6
En solution dans l'oxyde	Nd	11,1
	Zr	10,4
	Ce	7,7
	La	3,5
	Pr	3,2
	Sm	2,0
	Y	1,4
	Eu	0,5
	Pm	0,4
	Gd	0,2
Produits volatils	Cs	11,0
	Te	1,4
	Rb	1,0
	I	0,6

TABLE I. – Taux de création des principaux produits de fission en REP par la fission de l'uranium 235 pour un UO₂ de 45 GWj/t et enrichi à 4,25% en 235U [19]

C.4. Evolution de la céramique sous irradiation

Les dilatations différentielles entre centre et périphérie induisent des contraintes tangentielles de traction. Comme toute céramique, les pastilles combustibles ont un comportement fragile jusqu'à une température d'environ 1400°C ; le dépassement de la limite de résistance à la rupture du matériau est, en général, atteint dès la première montée en puissance et conduit à une fissuration radiale et transversale de la pastille. Cette fissuration se poursuit sur les fragments nouvellement formés. La figure I.12 montre une coupe radiale d'un combustible UO_2 irradié 1 cycle et qui présente cette fissuration. De plus, sous l'effet des contraintes élastiques induites par le champ de température, les pastilles prennent une forme dite « de diabolo » (figure I.13). Dès le début de l'irradiation, l'interaction des pointes de fission avec des pores du matériau disperse des lacunes dans le réseau. La diffusion de ces lacunes jusqu'aux joints de grains conduit à une densification globale du matériau. Cette densification se traduit notamment par une forte diminution de la densité de petits pores (< 2 à $3\mu m$). L'amplitude de ce phénomène, qui dépend de la microstructure initiale et notamment de la fine porosité, conduit à une variation de densité, et donc de volume, de l'ordre du pour cent. Dans le même temps, la création par fission de deux atomes à partir d'un seul noyau lourd conduit à un gonflement du combustible. Celui-ci se poursuit tout au long de l'irradiation. Ce gonflement dépend des conditions d'irradiation, en particulier de la température. En effet, tous les produits de fission ne participent pas de la même façon à ce gonflement, suivant la phase qu'ils forment ou la position qu'ils occupent en sursaturation dans la matrice. De plus, certains produits de fission sont gazeux (xénon et krypton) et peuvent, dans certaines conditions, former des bulles qui participent au gonflement global des pastilles. Pour les conditions nominales d'irradiation, ce gonflement est d'environ 0,06 à 0,07 % par GWj/tm.

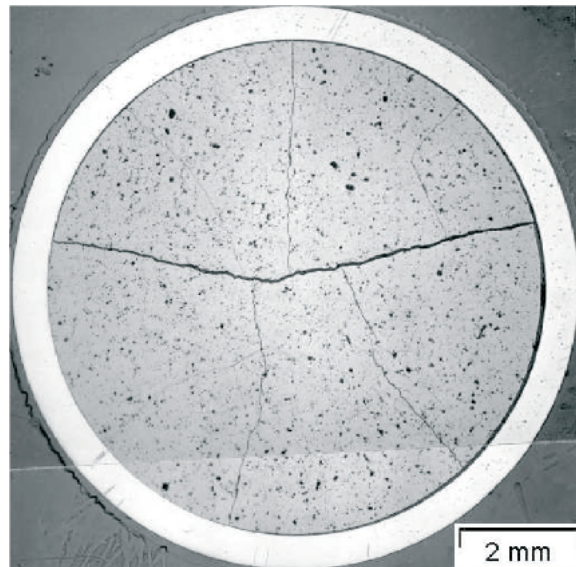


FIGURE I.12. – Coupe radiale d'un combustible UO_2 irradié 1 cycle, visualisation des fissurations dues à l'irradiation [27]

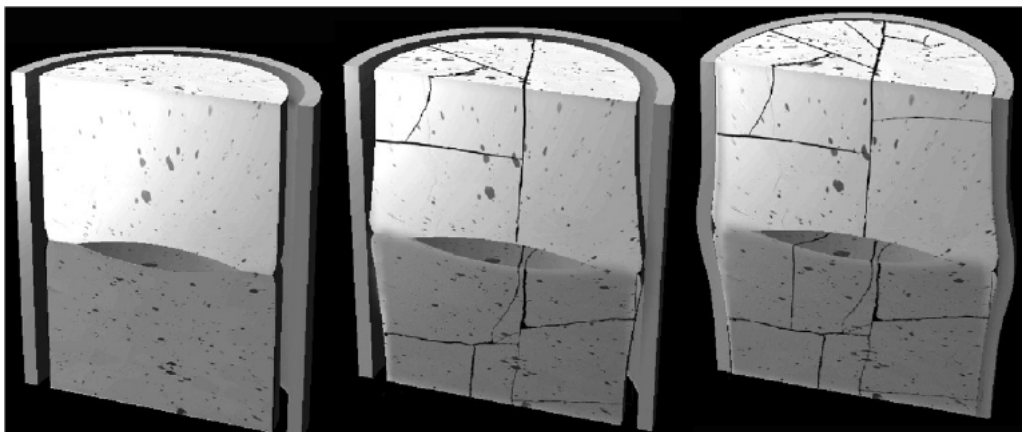


FIGURE I.13. – Schématisation de la fracturation des pastilles, de la mise en diabolo et de l'évolution du jeu entre les pastilles et la gaine au cours de l'irradiation [27]

Dans les combustibles REP irradiés à fort taux de combustion, il apparaît trois zones majeures distinctes avec des microstructures différentes [34, 35]. Ces zones clairement identifiables, sur la Figure I.14 pour un combustible UO_2 irradié 5 cycles en REP [36], correspondent à : i) une zone centrale caractérisée par une précipitation de bulles de gaz intragranulaires ($0R < r/R < 0,45R$), ii) une zone intermédiaire ($0,45R < r/R < 0,96R$), et iii) une zone de bordure (RIM region ou RIM region en anglais) ($0,96R < r/R < 1R$).

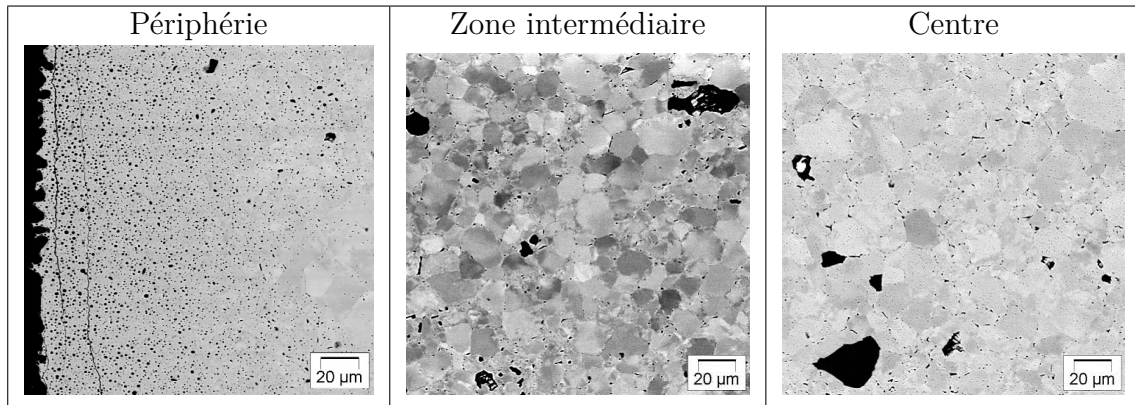


FIGURE I.14. – Images MEB de la périphérie, de la zone intermédiaire et de la zone centrale d'un combustible UO_2 irradié 5 cycles en REP

L'épaisseur de la couronne de RIM s'étend de $50 \mu\text{m}$ pour des combustibles UO_2 de 50 GWj/tm à $150 \mu\text{m}$ pour les combustibles à plus haut taux de combustion (80 GWj/tm [35, 37, 38]). L'article de Lemoine [39] décrit une remontée en extrême périphérie de pastille de la teneur en Pu. Ce phénomène est due principalement à la capture des neutrons épithermiques par l' ^{238}U [40, 41]. Cette teneur en Pu est de l'ordre de 3 à 4 % en extrême périphérie alors qu'au centre elle est d'environ 1 % après 5 cycles d'irradiation.

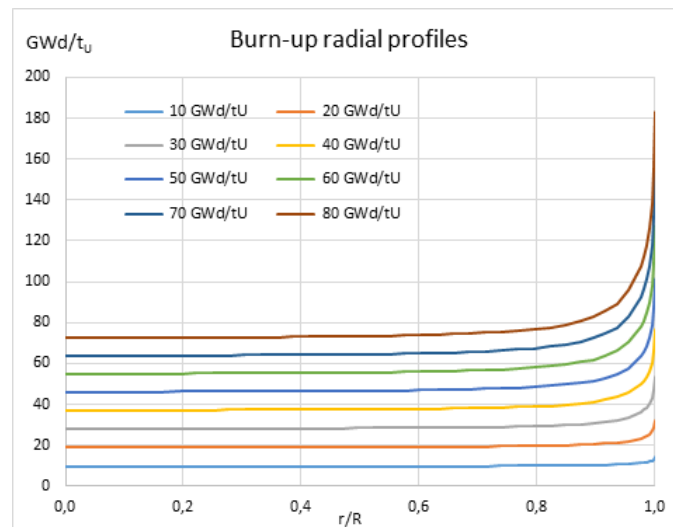


FIGURE I.15. – Profil radial Pu dans des pastilles REP irradiées jusqu'à 80 GWj/tm [39]

La remontée du Pu en périphérie induit un accroissement local du taux de combustion clairement mis en évidence par des mesures à la microsonde de la concentration en néodyme. Pour un taux de combustion moyen de $82,7 \text{ GWj/tm}$ pour une pastille irradiée 7 cycles en REP, la teneur supérieure en Nd en périphérie

(Figure I.16) permet de déterminer un taux de combustion moyen de 120 GWj/tm pour la zone de RIM.

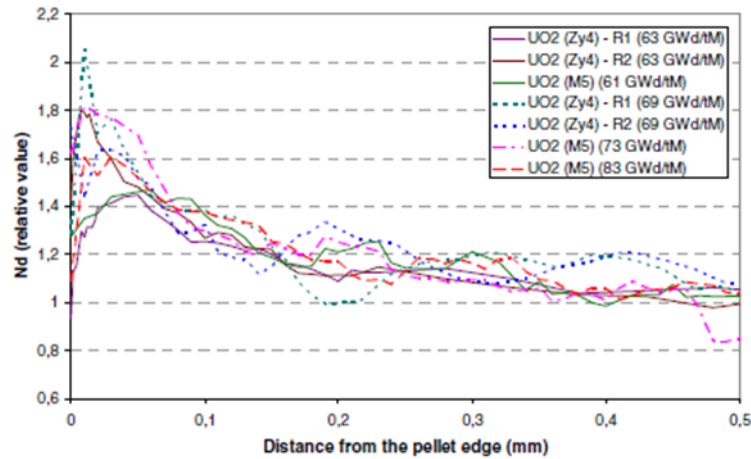


FIGURE I.16. – Profil radial du burn-up dans une pastille pour différentes irradiations

La zone de RIM, ou zone restructurée, se caractérise par une microstructure particulière (figure I.17) avec une taille de grain inférieure au micromètre [42, 43] et une importante porosité de l'ordre de 10 à 25 % [44]. La taille moyenne de ces bulles est de l'ordre du micromètre [45].

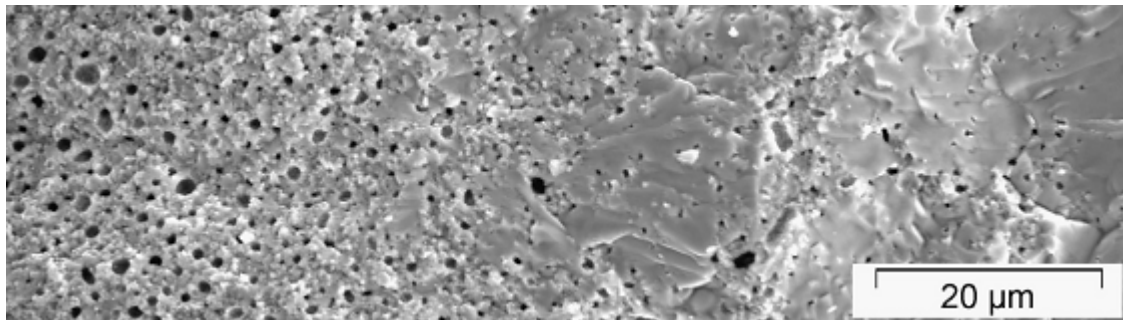


FIGURE I.17. – Image MEB de la microstructure du RIM pour un combustible d'UO₂ de 73 GWj/tm [46].

Cette porosité est remplie de gaz de fission. Ceci est illustré sur la Figure I.18 qui présente la répartition radiale du Xénon mesurée au SIMS [47, 48] sur un combustible REP irradié 5 cycles à 57,4 GWj/tm : l'augmentation du signal en périphérie est due à l'importante porosité de la zone de RIM (10 à 30%).

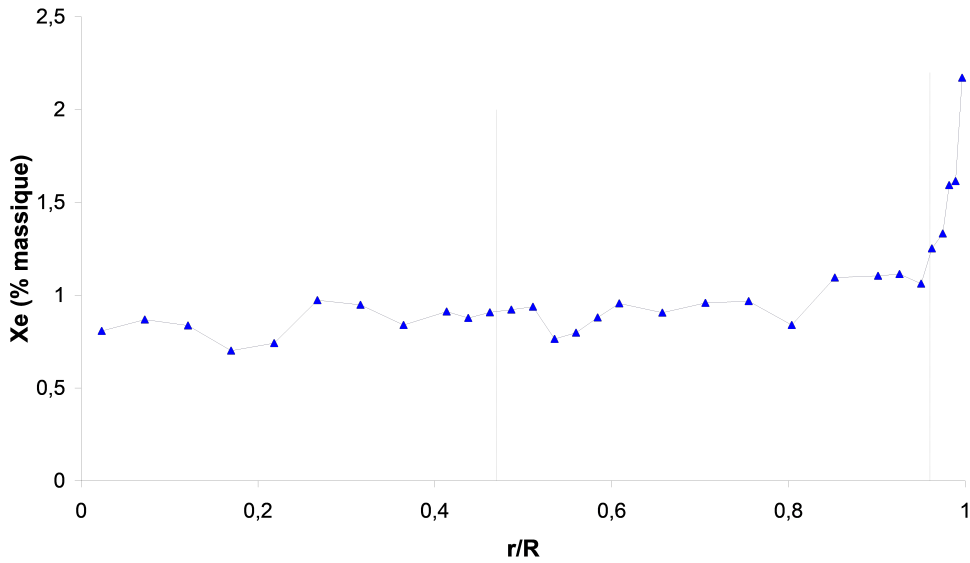


FIGURE I.18. – Répartition radiale du xénon dans une pastille REP irradiée 5 cycles [47]

L'apparition de la zone de RIM en périphérie modifie aussi les propriétés mécaniques de la céramique irradiée comme le montrent Matzke et Spino [49] avec une augmentation du facteur d'intensité de contraintes K_{IC} dans la zone périphérique des combustibles à fort taux de combustion. La Figure I.19 montre l'évolution radiale du facteur d'intensité de contraintes pour différents combustibles irradiés à fort taux de combustion.

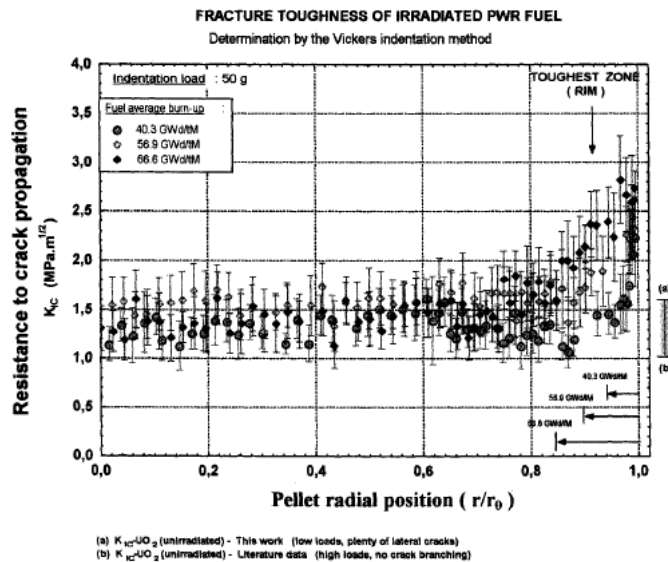


FIGURE I.19. – Evolution radiale du facteur d'intensité de contraintes K_{IC} pour des combustibles UO_2 irradiés à différents taux de combustion [49].

Cette zone de microstructure particulière va avoir un impact prépondérant dans le comportement du combustible en situation accidentelle (cf. ci-après).

C.5. Études de sûreté sur les combustibles à fort taux de combustion

Les évolutions des conditions d'exploitation des réacteurs et des combustibles, avec notamment l'augmentation des taux de combustion des crayons combustibles à décharge et l'utilisation de nouveaux matériaux de gainage des combustibles, nécessitent d'être étudiés pour satisfaire aux dossiers de sûreté/sécurité. En particulier des programmes de R&D sont menés afin de mieux comprendre le comportement du combustible en cas de fonctionnement accidentel de réacteurs de type :

- Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP)
- Accident de réactivité (Reactivity Initiated Accident-RIA)

C.5.a. L'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP)

L'APRP étudié pour les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) est un accident hypothétique provoqué par une brèche dans l'enveloppe du circuit primaire ; l'existence de cette brèche entraîne une chute de la pression dans le circuit primaire et une perte d'eau qui conduit à un échauffement des crayons combustibles. D'un point de vue sûreté, cet échauffement doit rester limité afin d'éviter la fusion du cœur et permettre sa refroidibilité post-accident. L'APRP est dimensionné notamment pour le système d'injection (d'eau) de sécurité, des composants mécaniques du circuit primaire et l'enceinte de confinement [50].

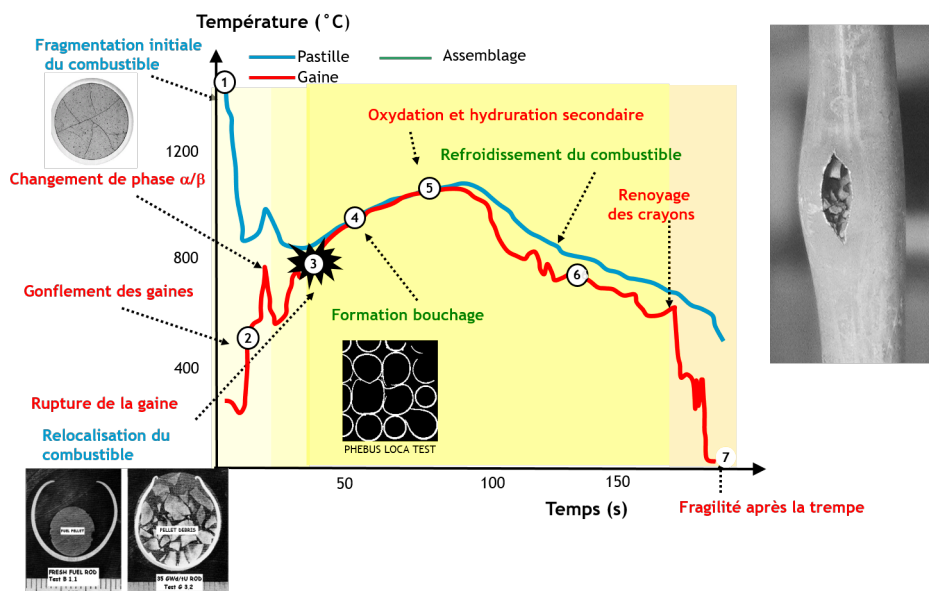


FIGURE I.20. – Phénoménologie d'un APRP (ref CEA)

C.5.b. Reactivity Initiated Accident (RIA)

Dans un réacteur à eau pressurisée, l'accident retenu pour prendre en compte une évolution incontrôlée de la réaction nucléaire est l'éjection d'une grappe de contrôle, formée de crayons absorbants qui participent à la maîtrise de la réaction nucléaire [51]. En cas de rupture du mécanisme de la grappe, la grappe est éjectée du fait de la différence de pression qui existe entre le circuit primaire (à 155 bars) et l'enceinte de confinement (à la pression atmosphérique). Cette éjection violente entraîne un emballement local de la réaction nucléaire pendant quelques dizaines de millisecondes (pulse de puissance), provoquant une augmentation rapide de la température du combustible localisé en périphérie de la pastille. Les contre-réactions neutroniques limitent alors le transitoire de puissance avant l'arrêt automatique du réacteur (chute des grappes de contrôle intactes) qui intervient dans un second temps.

Nous allons étudier plus en détail ce phénomène, au centre des enjeux de la thèse, dans la partie suivante.

D. Description détaillée des études RIA

Comme indiqué précédemment, un RIA est un accident nucléaire qui entraîne une augmentation non désirée du taux de fission et de la puissance du réacteur. L'augmentation de la puissance peut endommager le cœur de réacteur, et dans des cas très graves, aller jusqu'à rupture de celui-ci. Quelques accidents de ce genre se sont produits sur les réacteurs de recherche de première génération [52], par exemple l'accident de 1952 dans le réacteur NRX de Chalk River, au Canada [53], et l'accident de 1961 SL-1 à Idaho Falls, aux Etats-Unis [54]. Les leçons tirées de ces premiers événements ont été prises en compte lors de la conception des réacteurs de seconde génération dans les années 1960. Dans les réacteurs REP et REB (Réacteur à Eau Bouillante), qui sont les deux types les plus courants de centrales dans le monde [55], la protection contre un accident de type RIA est assurée par les systèmes de sûreté mais aussi par le mécanisme de rétroaction inhérent au réacteur.

La conséquence immédiate d'un RIA est l'élévation rapide de la puissance et donc de la température du combustible. L'excursion en puissance peut entraîner la rupture des gaines et le rejet de matières radioactives (combustible) dans le circuit primaire. L'expulsion du combustible chaud dans l'eau peut provoquer la génération rapide de vapeur et des pics de pression, ce qui peut endommager les assemblages de combustible à proximité, d'autres composants du cœur du réacteur, voir la cuve du réacteur. Pour empêcher ces conséquences potentielles, des critères de sécurité sont généralement établis pour limiter l'injection d'énergie dans le combustible.

Historiquement, le pire accident de type RIA a eu lieu le 26 avril 1986 dans le réacteur 4 de la centrale de Tchernobyl en Ukraine [56]. Le réacteur, de type réacteur de grande puissance à tubes de force (RMBK), a subi une augmentation

incontrôlée de la puissance, conduisant à la fusion du cœur du réacteur et à des retombées radioactives sur la majeure partie de l'hémisphère Nord. Il convient également de noter que l'accident s'est produit dans le cadre d'un essai sur le réacteur, où les lignes directrices d'exploitation normales ont été ignorées et où les systèmes de sûreté ont été volontairement rendus inopérants.

Au début des années 1990, des programmes expérimentaux, sous la forme d'essais d'irradiations impulsives, ont été lancés en France, au Japon et en Russie pour étudier le comportement du combustible à haut taux de combustion lors d'un RIA. Ces programmes d'essais visaient principalement à vérifier la pertinence des critères de sécurité, qui à l'époque étaient établis sur les résultats des essais pour du combustible non irradié ou modérément irradié. Ces essais ont permis notamment de montrer que la rupture de la gaine se produit à des enthalpies inférieures pour les crayons de combustibles pré-irradiés par rapport aux non-irradiés, et que la probabilité d'une rupture augmente avec l'augmentation du taux de combustion.

D.1. Modèles de défaillance

Les principales préoccupations en matière de sûreté pour les RIA sont la perte de la capacité de refroidissement à long terme du cœur, les dommages possibles à la cuve du réacteur et au cœur par la production d'ondes de pression. En raison des difficultés liées aux études directes à grande échelle de ces phénomènes, les expériences RIA et la modélisation ont traditionnellement porté sur la défaillance des barres de combustible (entraînant la rupture de la gaine et la dispersion du combustible et des produits de fission), car il s'agit d'une condition préalable à la perte de refroidissement du cœur et à la génération d'ondes de pression. La phénoménologie d'un RIA est décrite sur la figure I.21.

Le comportement de la gaine de crayons combustible lors d'un RIA est influencé par les caractéristiques du pic de puissance subi, les conditions physico-chimiques du caloporteur dans le cœur, de la conception de la gaine et de l'état de celle-ci (dépendant du taux de combustion). Les résultats des essais de simulation RIA montrent qu'il existe quatre modes de défaillance possibles de la gaine [57] :

- un à basse température :
 - par interaction mécanique entre la pastille et la gaine, au début de la phase d'échauffement, pour les crayons de combustible à haut taux de combustion.
- et trois à haute température :
 - par le gonflement et l'éclatement de la gaine, qui se produisent suite à la phase d'ébullition de l'eau au contact de la gaine et de la surpression interne du crayon ;
 - par rupture de la gaine lors de la trempe à haute température, qui se produit en raison de la fragilisation due à l'oxydation à haute température de la gaine pendant la phase d'ébullition ;
 - par la fusion de gaine et aussi possiblement des pastilles de combustible.

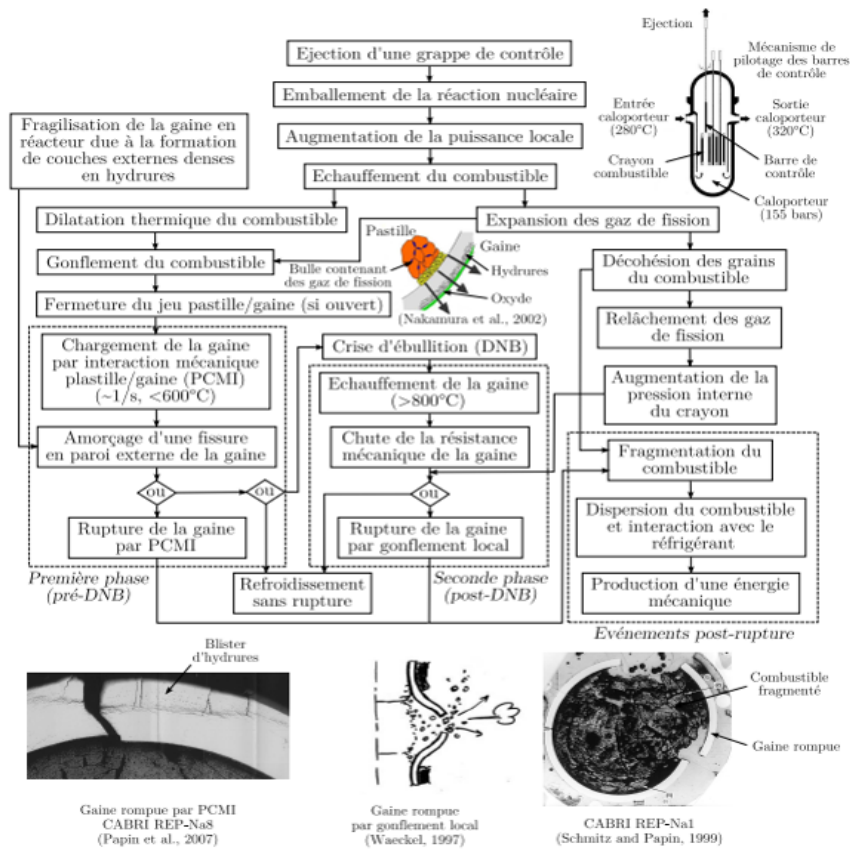


FIGURE I.21. – Phénoménologie d'un RIA (ref CEA)

D.2. Aperçu des méthodologies d'étude des RIA

Notre compréhension du comportement du combustible pendant les RIA est basée sur les résultats des essais de reproduction de ces derniers, effectués sur des crayons instrumentés de courte longueur dans des réacteurs dédiés, et des essais à effets séparés hors réacteur, effectués sur des échantillons de combustible ou de gaine. À ce jour, plus d'un millier d'essais de simulation RIA ont été effectués sur des crayons de combustible non-irradiés [58–61] au sein de réacteurs de recherche aux États-Unis, au Japon, en Russie, au Kazakhstan et en Roumanie. Les travaux ultérieurs ont porté sur le comportement des crayons de combustible irradiés. Au cours des 50 dernières années, environ 165 crayons de combustible de réacteur à eau légère ont été étudiés dans six réacteurs de recherche différents :

- SPERT-CDC (Special Power Excursion Reactor – Capsule Driver Core, Idaho Falls, ID, USA), expériences réalisées en 1969-1970 [59] ;
- PBF (Power Burst Facility, Idaho Falls, ID, USA). Expériences réalisées en 1978-1980 [62–65] ;
- IGR (Pulse Graphite Reactor, Kurchatov, Kazakhstan). Expériences réalisées

- en 1990-1992 [66] ;
- BGR (Fast Pulse Graphite Reactor, Sarov, Russie). Expériences menées depuis 1997 [67, 68] ;
- NSRR (Nuclear Safety Research Reactor, Tokai, Japon). Expérimentations en cours depuis 1975 [69–73] ;
- CABRI (Cadarache, France, [74]). Expérimentations réalisées en 1993-2002 avec une boucle de réfrigérant au sodium. Les essais avec une boucle de réfrigérant à l'eau ont débuté en 2018 [75].

En outre, un grand nombre d'essais mécaniques sur des gaines ont été effectués en appui des analyses RIA, et ce dans plusieurs laboratoires (en France, aux États-Unis, au Japon, en Corée, en Russie, en Suède et en Hongrie) avec différents types de gaines. Ces études comprennent principalement :

- des essais d'éclatement, lorsque des échantillons de gaine sont soumis à une pression interne ;
- des essais de type-mandrin, où les échantillons de gaine sont chargés à l'intérieur par un mandrin en expansion ;
- des essais de traction sur anneaux de déformation conventionnels et plans, dans lesquels des échantillons de gaine en forme d'anneau avec deux sections de jauge crantée sont mis en tension par des inserts.

Le transfert de chaleur de la gaine au caloporteur dans des conditions de type RIA a été étudié dans une série d'expériences dans la boucle d'essai PATRICIA du CEA, à Grenoble, en France [76–78]. Deux séries d'essais ont révélé des effets cinétiques significatifs dans le transfert de chaleur de la gaine au caloporteur : le flux de chaleur critique, c'est-à-dire le flux de chaleur seuil auquel une crise d'ébullition se produit, était significativement plus élevé dans les essais transitoires qu'en régime permanent. Il en était de même pour la température de surface critique, c'est-à-dire la température de surface à laquelle l'eau au contact de la gaine entre en état d'ébullition. Des essais ont été effectués dans le réacteur NSRR, afin d'étudier l'interaction entre les fragments de combustible solide et l'eau. L'interaction entre le combustible et le liquide de refroidissement est habituellement étudiée en lien avec la défaillance de la gaine de combustible dans les essais de simulation de RIA, mais ici les essais visaient à séparer le phénomène FCI (pour rappel, Fuel-Coolant Interaction) des mécanismes de défaillance de la gaine de combustible. En particulier, ces essais visaient à déterminer la relation entre le rapport de conversion de l'énergie thermique à mécanique et la taille des particules de combustible solide.

D.3. Programmes de simulation

La simulation numérique constitue un axe majeur pour l'étude de situations de RIA. Divers codes sont utilisés pour cela : ALCYONE [79], Bison [80], RANNS [81], RAPTA-5 [82], FALCON [83], FRAPTRAN [84], SCANAIR TESP-ROD [85, 86] et TRANSURANUS [87]. Des codes de neutronique et de thermohydraulique

sont nécessaires à l'échelle du cœur du réacteur pour analyser la réponse de celui-ci aux scénarios d'accident hypothétiques. Les analyses à l'échelle du cœur impliquent une solution simultanée d'équations pour le transport des neutrons, le transport de la chaleur à l'intérieur des crayons de combustibles et à travers l'interface gaine-caloporteur, le comportement mécanique du combustible et de la gaine, et le comportement thermohydraulique du caloporteur.

À la suite des analyses à l'échelle du cœur, des modèles numériques peuvent être utilisés pour analyser en détail le comportement thermique et mécanique du crayon combustible. De tels codes sont également nécessaires pour l'évaluation et l'interprétation des essais de simulation du RIA dans les réacteurs tests, et les modèles des codes sont habituellement vérifiés et étalonnés en fonction des données de ces essais. Comme le souligne Sagrado [88] dans la conclusion de son article comparant le code SCANAIR-7.1 et le code FRAPTRAN-1.4, il est difficile d'évaluer les forces et faiblesses de chaque modèle devant la rareté de mesures expérimentales pour les confronter. Ce dernier point a justifié en grande partie le démarrage de l'étude présentée dans ce mémoire.

D.4. Présentation d'un exemple de RIA

Nous allons présenter un exemple de l'évolution de la température dans le combustible lors d'un RIA tel que calculé par le programme de simulation ALCYONE afin de servir de base aux études ultérieures. ALCYONE est un code multi-dimensionnel (1D, 2D (r, θ), 2D (r, z) et 3D) fonctionnant sur le modèle des éléments finis et couple des équations de thermodynamique et physico-chimie sous irradiation [79] afin de prédire les deux phases d'un RIA (Interaction mécanique pastille / gaine et crise d'ébullition). Il permet de rendre compte de la température maximale du réfrigérant et de la surface externe de la gaine, la température et la contrainte radiale dans la pastille de combustible, les zones de fissuration du joint de grain et le relâchement des gaz de fission.

La figure I.22 est un graphique représentant la température d'une pastille à différents temps, selon sa position radiale, obtenue pour un cas 2D axisymétrique. Ce graphique est issu d'une simulation ALCYONE basée sur l'expérience intégrale dédié RH-1 réalisée sur le réacteur NSRR. C'est un cas extrêmement rapide, le temps d'impulsion est 4.4 ms (début du pulse à $t=0,1405$ s). En comparaison sur les tests REP-Na (réacteur CABRI), la durée de l'impulsion est comprise entre 8,8 et 76,4 ms. L'outil numérique permet d'obtenir des informations de températures dans la pastille avec des pas de temps beaucoup plus rapprochés (1.3 ms entre t_1 et t_2) que dans l'expérience.

La dynamique de température que l'on retrouve sur cet exemple est caractéristique de l'accident de réactivité :

- Hausse rapide de la température du combustible, avec une élévation à coeur (Position radiale = 0), de 400 à 1300°C en environ 5 ms, cela représente un gradient d'environ $20\,000^\circ\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$

- Une température maximale en périphérie de pastille pendant la durée de l'impulsion. Ce "pic" de température se positionne à environ 4,1 mm de rayon, avec une épaisseur d'environ 0,5 mm. Pour RH-1 la température maximale (calculée par ALCYONE) est d'environ 1800°C, sur REP-Na5 ce maximum est de 2200°C (calculé par SCANAIR pour un temps de pulse de 25 ms).

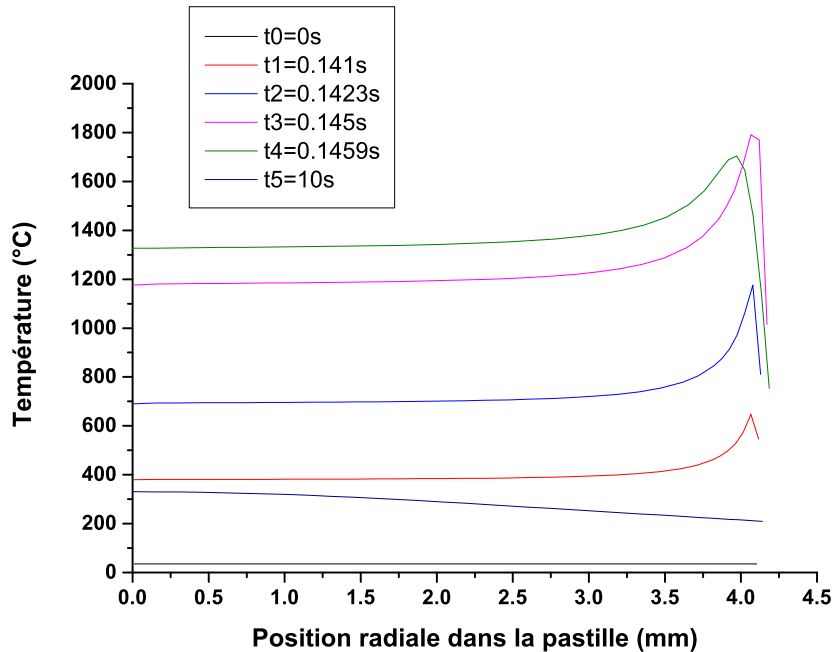


FIGURE I.22. – Graphique de la température du combustible en fonction de sa distance radiale avec le centre de la pastille, à différents temps[79]

Nous n'avons décrit ici que la partie thermique, mais il faut souligner la diversité des phénomènes physiques intervenant lors de ce transitoire : évolution de la microstructure, contraintes mécaniques, comportement des produits de fission, de la gaine.

D.5. Bilan

Cette revue bibliographique consacrée aux RIA met en exergue, outre sa complexité, le fait qu'il n'existe pas de tests dits à effets séparés intégrant un couplage combustible irradié/gaine voire même du combustible irradié seul. Les accès aux données expérimentales se font, à ce jour, quasi exclusivement grâce à des expériences intégrales. Celles-ci bien qu'étant par essence représentatives de l'ensemble de la phénoménologie, sont extrêmement coûteuses et particulièrement complexes à mettre en œuvre et nécessitent l'accès à un réacteur de recherche. C'est pourquoi il existe un fort intérêt dans la communauté pour le déploiement d'une plateforme expérimentale pouvant pallier cet état de fait, et ramener une partie des études

physiques associées au RIA à l'échelle du laboratoire. Dès le démarrage du projet relatif à la thèse, le chauffage par laser est apparu comme une solution d'intérêt. Nous décrivons donc dans la section suivante (E) l'apport des techniques laser dans le domaine à travers une synthèse bibliographique consacrée à ce sujet.

E. Chauffage laser appliqué à l'étude des matériaux nucléaires

Dans le contexte décrit précédemment, l'objectif de cette thèse est d'explorer le potentiel des technologies laser pour générer des gradients thermiques spatiaux-temporels complexes tels que ceux rencontrés sur combustible lors d'un événement de type RIA. En effet parmi les moyens de chauffage pour étudier le comportement des matériaux à haute température à l'échelle du laboratoire (chauffage résistif ou inductif d'un creuset, irradiation par faisceau d'électrons), le chauffage par laser présente de nombreux avantages :

- Il s'agit d'une technique sans contact qui peut facilement porter les matériaux à des températures extrêmes avec une précision spatiale et un contrôle temporel très élevés. Il est par ailleurs aisé de transporter le faisceau jusqu'à l'échantillon, notamment par fibre, et de mettre en forme le faisceau à l'aide d'optiques adaptées pour obtenir la géométrie de chauffe désirée.
- Avec l'utilisation d'un faisceau focalisé, l'échantillon testé agit essentiellement comme son propre creuset de confinement, évitant ainsi la contamination par des parois et pratiquement sans affecter l'environnement, car seule une petite partie du matériau est traitée ;
- Contrairement aux plateformes actuelles du CEA de Cadarache, où l'échantillon est enfermé dans un creuset, le chauffage par laser, en raison de l'accès optique possible à l'échantillon, peut être combiné à plusieurs diagnostics sans contact tels que la pyrométrie, l'imagerie infrarouge ou visible. Ces mesures optiques permettent d'éviter les interférences qui se produiraient normalement avec des mesures de température par contact direct. Les mesures sont par ailleurs moins affectées par le rayonnement thermique qui pourrait provenir d'un creuset de confinement ;

Le chauffage par laser haute puissance est donc un outil tout à fait pertinent pour les études en laboratoire de recherche de matériaux nucléaires et comme nous allons le voir dans la partie suivante, il existe un historique de presque une cinquantaine d'années sur ce sujet.

E.1. Historique de l'utilisation de Laser sur combustibles

Les premières utilisations de laser sur combustible remontent aux années 70 avec les travaux de Asami et Bober [89, 90]. Un laser CO₂ (longueur d'onde d'émission de 10,6 μ m) pouvant atteindre les 400 W a été utilisé pour envoyer des impulsions

de 1 à 10 ms, générées par un obturateur, sur l'échantillon de combustible afin d'analyser sa composition. La température peut atteindre dans les conditions de ces expériences des valeurs aussi hautes que 4000 K, voir 5000 K (incertitude donnée de 10%). Notons que la température n'était pas mesurée directement mais estimée par la vitesse finale supersonique du jet de vapeur. L'objectif de Bober était de déterminer la pression de vapeur dans le combustible soumis à une rampe extrêmement rapide. Afin de parvenir à des températures aussi importantes sur des temps aussi courts le faisceau était focalisé à l'aide d'une lentille à la surface de l' UO_2 , suivant le montage décrit figure I.23.

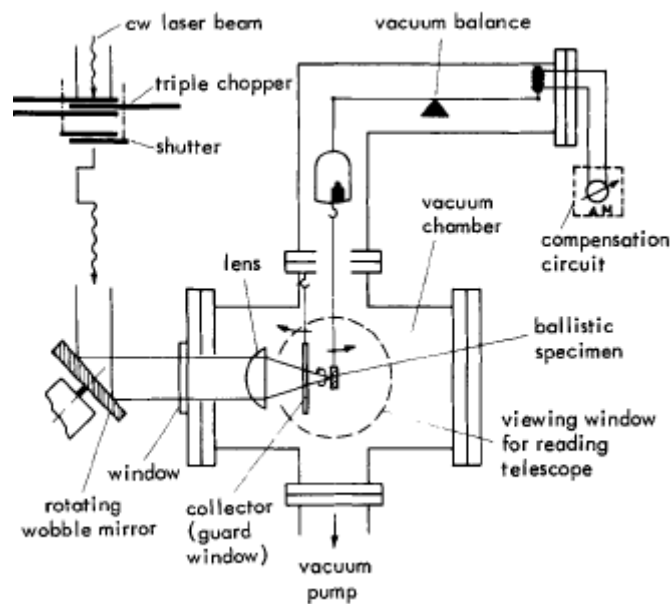


FIGURE I.23. – Schéma de la plateforme utilisée à Karlsruhe par Bober et al [90]. Technique dite LIV, Laser-Induced Vaporization.

En 1987, des expérimentations utilisant des nouvelles générations de pyromètres capables de suivre les gradients thermiques de chauffe laser sur UO_2 [91, 92] offrent de nouvelles possibilités d'études et d'utilisation des lasers, ces derniers ayant aussi continué d'évoluer. Nous avons ainsi pu distinguer dans la littérature différents usages de l'interaction Laser/matériau :

- Mesure de propriétés thermo-physiques et/ou thermo-chimiques à haute température de combustible solide et/ou liquide
- Analyses de composition sans contact (Laser Induced Vaporization MassSpectrometry (LIVMS) et Laser Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS))
- Etude mécanique par chocs laser
- Usinage laser (ablation, découpe et soudure)

Nous ne détaillerons pas le dernier point sur les procédés lasers qui concerne plutôt la mise en oeuvre de machines outils laser pour se concentrer sur les études

scientifiques. Notons également que dans un article publié en 2010 par une équipe du Department of Atomic Energy (DAE), une équipe indienne a proposé l'utilisation d'un laser pour étudier un Reactivity Initiated Accident - accident de réactivité (RIA) ou Loss-Of-Coolant Accident (LOCA) [93]. Cependant, depuis cette première publication, aucune trace plus récente dans la littérature n'est disponible, Nous ne savons donc pas si ce projet a abouti.

E.2. Mesure de propriétés physico-chimiques à haute température

Au début des années 2000, plusieurs équipes font usage de lasers dans le cadre des mesures de propriétés thermo-physiques et ou thermo-chimique à haute température sur combustible. On trouve dans la littérature quelques travaux d'équipes japonaises, Amaya et al [94] par exemple, mais surtout une quantité très importante de publications des équipes de l'ITU en Allemagne (Institute for Transuranium Elements, Karlsruhe) qui se sont spécialisées sur ce sujet. Sur la base de lasers de type Nd :YAG de plusieurs kW, on peut distinguer 2 types d'études : la détermination de changement de phase, ou la mesure de diffusivité.

Dans le premier cas le chauffage laser permet de monter à très haute température le matériau d'étude, puis des mesures pyrométriques rapides et extrêmement précises (l'incertitude donnée sur les mesures de températures est de l'ordre de 1%) permettent de mettre en évidence des plateaux de température lors du refroidissement, correspondant à des changements de phase (Expérience décrite Figure I.24). La plateforme d'ITU a ainsi permis de déterminer le point de fusion de l' UO_2 dans différentes conditions d'oxydation : $\text{UO}_{(2+x)}$ [95], U_3O_8 [96], mais aussi pour d'autres éléments oxydés : PuO_2 [97], $\text{U}_{(1-x)}\text{Am}_{(x)}\text{O}_2$ [98], NpO_2 [99], et d'autres formes d' UO_2 comme des nano-cristaux [100].

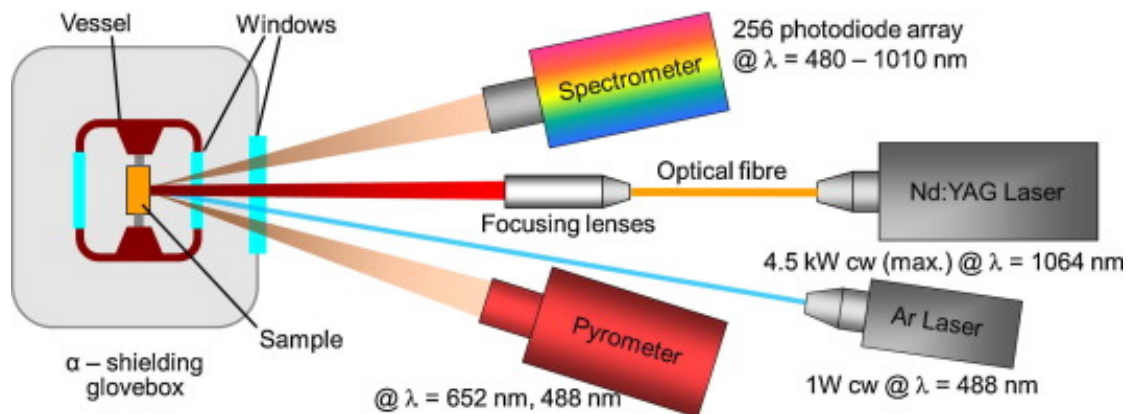


FIGURE I.24. – Schéma de la plateforme utilisée par Böhler au ERJRC-ITU [101]

Dans le deuxième cas la méthode dite de flash laser est utilisée. Cette méthode consiste à envoyer une impulsion laser sur une face d'un échantillon et de mesurer le

temps nécessaire à l'énergie thermique pour atteindre la face arrière. En connaissant l'épaisseur de l'échantillon, on peut calculer la vitesse de propagation de la chaleur dans le matériau et remonter à la diffusivité thermique de l'échantillon. Sont reportées par exemple à l'aide de ces méthodes des mesures de diffusivité thermique de UO_2 jusqu'à 3060 K[102].

Enfin un dernier exemple de l'utilisation de cette plateforme est celui de Quaini et al [103], qui a étudié le comportement du zircaloy (le matériau de la gaine) avec un mélange UO_2 - PuO_2 à haute température, dans des cas de transition solide/liquide pour l'étude de la fusion du coeur d'un réacteur nucléaire (la résultante d'un RIA ou d'un LOCA).

E.3. Analyses sans contact

L'utilisation d'un laser de puissance focalisé peut permettre de vaporiser une zone ciblée d'un échantillon afin de mesurer la composition des gaz relâchés. On désigne cette technique sous le nom de LIV (Laser-Induced Vaporisation). Dans de telles conditions l'ordre de grandeur des températures atteinte est compris entre 3000 et 5000 K. Le terme de technique LIVMS (Laser Induced Vaporization Mass Spectrometry) est également utilisé (les premières expériences remontent à 1968 [104] dans le domaine de l'aérospatiale), il s'agit dans ce cas de coupler la technique LIV à une méthode de spectrométrie : TOF MS (Time Of Flight Mass Spectrometry), QMS (Quadrupole Mass Spectrometry).

Plusieurs études ont utilisé la technique LIVMS sur de l' UO_2 , on peut citer particulièrement celles de Joseph et al [105] utilisant la QMS et celle de Pflieger et al [106] utilisant la TOF MS.

Dans l'étude de Joseph et al, un laser Nd :YAG de 532 nm avec une durée d'impulsion de 8 ns est utilisé pour vaporiser de l' UO_2 . En répétant suffisamment d'impulsions, et en réglant le QMS pour plusieurs rapports masse/charge, l'intensité de chacune des espèces formées dans la plume d'évaporation peut être obtenue. Joseph et al. utilisèrent le graphite comme matériau référence pour valider son installation LIVMS, celle-ci est imagée figure I.25.

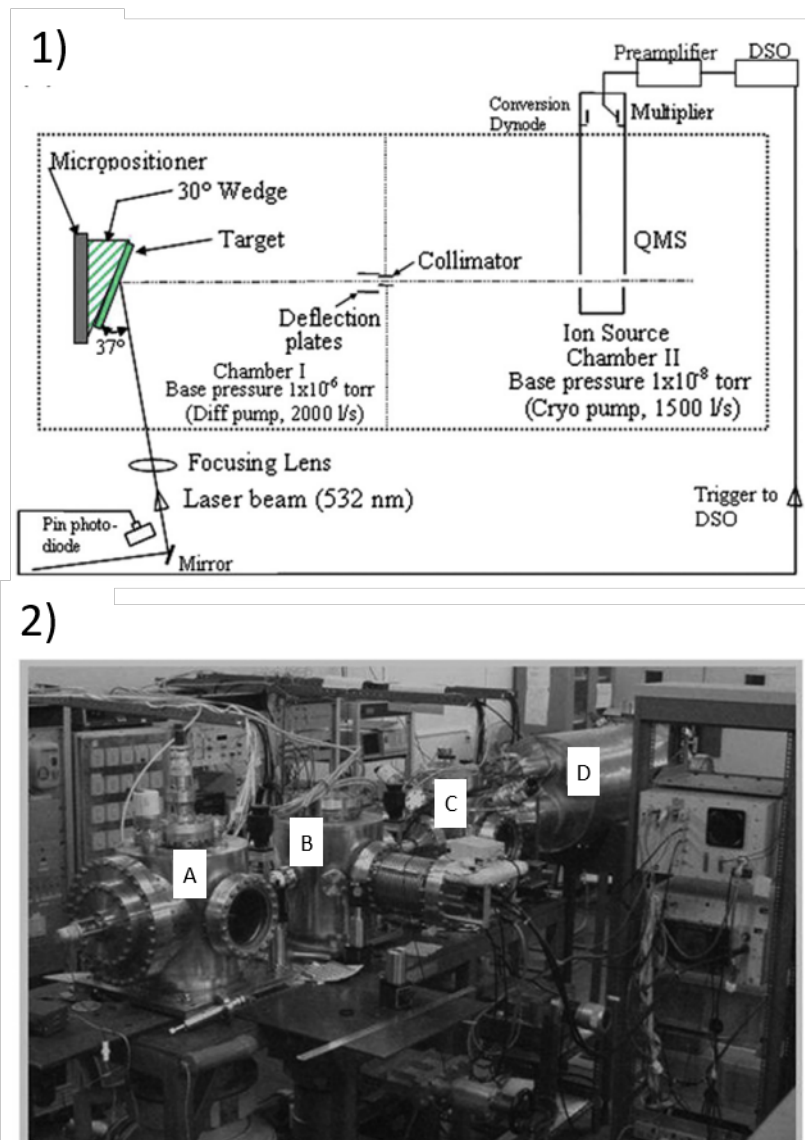


FIGURE I.25. – 1) Schéma de la plateforme LIVMS. 2) Photo de l'installation LIVMS avec A : la chambre expérimentale. B : la chambre QMS. C : la chambre MALDI (Matrix Assisted Laser Desorption Ionization) et D : le tube de guidage RTFOMS (Reflectron-Time of Flight Mass Spectrometer) [107]

Pflieger et al quand à eux ont utilisé cette technique pour déterminer les pressions de vapeur relatives d' UO_3 , d' UO_2 et d' UO_2^+ à 3300K, ainsi que les rapports de pressions partielles entre $p(\text{UO}_2)/p(\text{UO})$, $p(\text{UO}_3)/p(\text{UO}_2)$ et $p(\text{UO}_2^+)/p(\text{UO}^+)$. Pour cela, la configuration comprenait un laser Nd :YaG (1064nm et 4,5kW) associé à un pyromètre haute vitesse à 650nm tel que décrit sur la figure I.26.

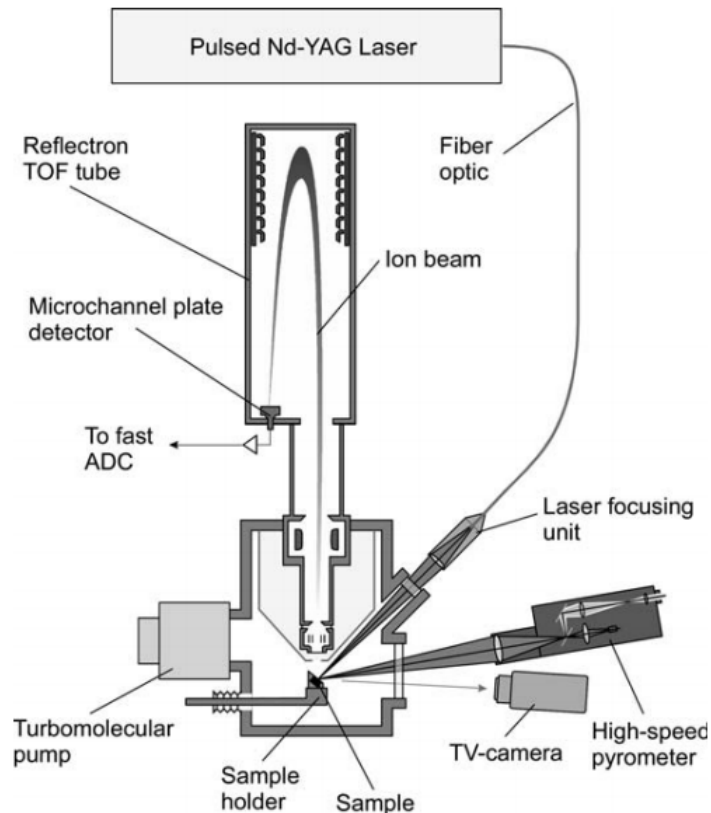


FIGURE I.26. – Schéma de la plateforme expérimentale de Pflieger et al [108]

Un autre méthode analyse par spectrométrie optique le rayonnement du plasma induit par laser, dans lequel se trouve des raies d'émission caractéristiques des espèces ionisées [109, 110]. Cette méthode désignée sous le nom de LIBS (Laser Induced Breakdown Spectroscopy) ou LA-OES (Laser Ablation - Optical Emission Spectroscopy) se rapproche fortement dans son montage et dans son utilisation du LIVMS par TOF MS. Les températures atteintes sont cependant beaucoup plus élevées que précédemment et la technique nécessite l'emploi de laser intenses.

E.4. Études mécaniques

La technique de choc par Laser est bien établie dans le domaine des tests d'adhérence, notamment dans le domaine de l'aéronautique. Comme le décrit avec humour Smith dans la seule publication relative à des travaux dans le domaine nucléaire [111] le principe est assez simple : "Frappez l'échantillon avec un gros marteau et laissez l'onde de choc qui en résulte séparer l'interface". Le laser de choc (Shock Laser - LS) a le rôle du gros marteau, la jonction entre la gaine et le combustible celui de l'interface. Cette onde de choc permet de reproduire les forces mécaniques responsables du processus de rupture par délaminage. Dans les travaux de Smith et al, l'installation possède un vélocimètre par détection

laser (laser-based ultrasonic C-scan system - LUT), qui va mesurer le déplacement de la surface dû à l'onde de choc. Cela permet à l'aide de modèles appropriés de remonter aux contraintes mécaniques dans l'assemblage et d'étudier l'interaction gaine/combustible. Le laser de choc (LS) est un laser Q-Switch Nd :YAG, qui génère des impulsions d'environ 10 ns avec une énergie maximale de 3.5 J à une longueur d'onde de 1064 nm. Le LUT fonctionne à la même longueur d'onde avec des impulsions de 120 μ s. La configuration est décrite Figure I.27.

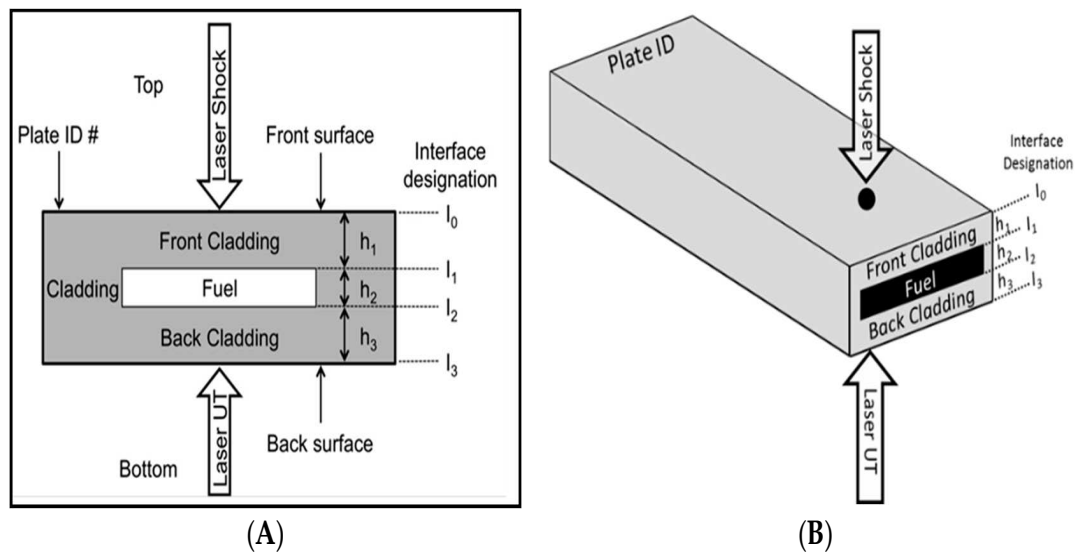


FIGURE I.27. – Diagramme présentant le montage avec les deux faisceaux laser (LS et LUT), la gaine et le combustible, tel qu'utilisé par Smith [111]

E.5. Intégration en laboratoire haute activité

L'objectif au delà de la thèse, s'il est avéré que l'on puisse utiliser un laser pour reproduire les gradients thermiques d'un accident type RIA sur un échantillon d' UO_2 est de développer une expérience dédiée en Laboratoire de Haute Activité (LHA). Un LHA contient une "enceinte" ou cellule qui protège les expérimentateurs contre les rayonnements (gamma notamment) provenant des pastilles de combustibles irradiés. L'enceinte en béton, en plomb ou en fonte, est équipée de télémanipulateurs (bras robotisé commandé à distance par un opérateur qui, posté derrière un vitrage de protection ou un écran de contrôle, peut travailler sur des produits radioactifs

tout en restant à l'abri des rayonnements) et d'un hublot comme on peut le voir sur la figure I.28.

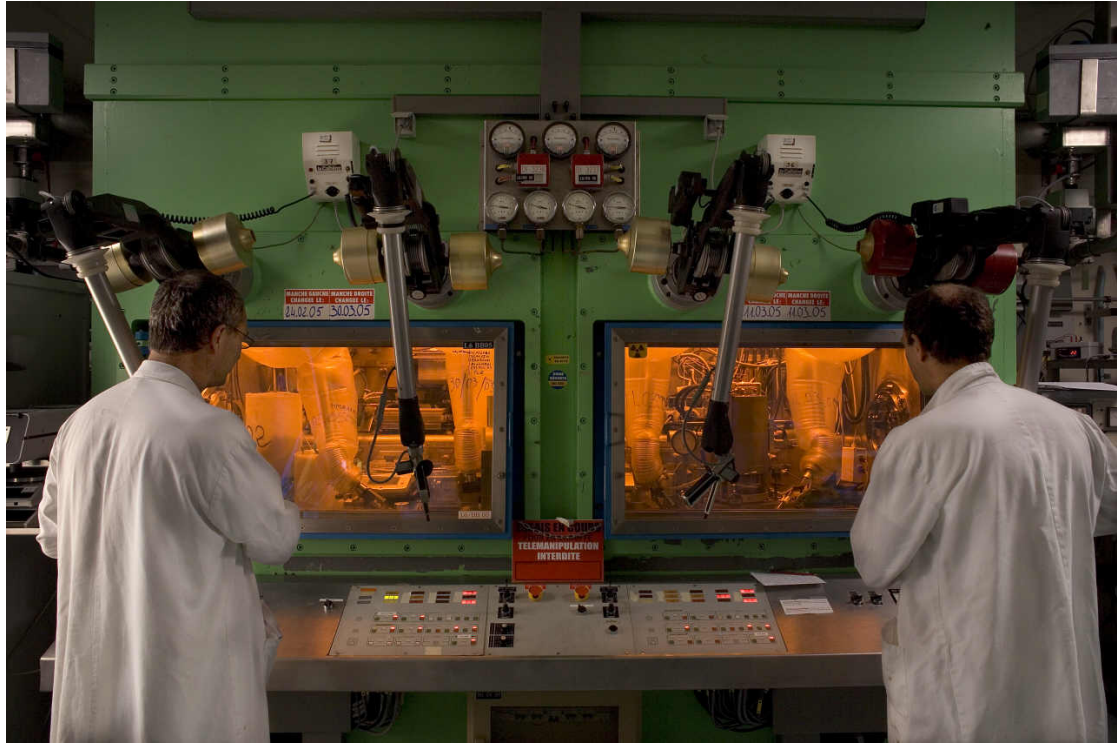


FIGURE I.28. – Photographique d'un laboratoire de haute activité (Crédits photo : A.Gonin/CEA)

Les considérations principales pour un système devant intégrer un LHA sont la durée de vie des composants, et la capacité d'utilisation par télémanipulateurs des différentes composantes de l'expérience. Il existe très peu de données dans la littérature sur la durée de vie des composants optiques dans de telles conditions et ceci restera un point important à étudier à l'issue de la thèse, mais sur lequel nous ne nous sommes pas penchés.

F. Synthèse et conclusions

La compréhension du comportement des matériaux combustibles et des assemblages sous fortes sollicitations thermiques est un enjeu majeur dans le domaine du nucléaire. Les situations accidentelles de type RIA que nous avons décrites sont extrêmement complexes à étudier et le développement des modèles numériques associés requiert la comparaison à des résultats d'expériences dédiées dans des conditions parfaitement contrôlées. C'est dans ce contexte que s'inscrivent ces travaux de thèse avec la proposition d'étudier le potentiel des technologies laser pour reproduire les sollicitations thermiques sur des échantillons de combustibles.

Nous avons vu qu'il existe un historique de bientôt quarante ans sur l'utilisation de Laser pour des études sur UO_2 et autres matériaux nucléaires d'intérêt. Ces études concernent principalement la détermination de propriétés physiques des matériaux à très haute température. Soulignons que depuis les premiers travaux de Bober [90], nous observons une évolution notable des technologies de Laser utilisées, basées au départ sur les lasers CO_2 ou Rubis vers des lasers à disque ou fibre industriels, mais aussi de l'instrumentation d'acquisition de température avec notamment le développement de techniques de pyrométrie multispectrales. L'utilisation de lasers a ainsi un fort potentiel dans le domaine des matériaux nucléaires et les chapitres suivants permettront de l'explorer pour notre problématique particulière.

II. Modèle numérique d'interaction laser / UO_2 – Application au dimensionnement des expériences RIA.

Sommaire

A	Introduction	47
B	Propriétés de l' UO_2	47
	B.1 Propriétés thermo-physiques	48
	B.2 Propriétés thermiques	49
	B.3 Propriétés Optiques	51
	B.4 Propriétés Mécaniques	55
C	Présentation du modèle numérique	59
	C.1 Présentation générale du modèle	59
	C.2 Scénario 1 : Simulation d'une chauffe de pastille sans gaine	62
	C.3 Scénario 2 : Simulation d'une chauffe de pastille avec gaine	65
	C.4 Étude de l'influence liée à un chauffage volumique	72
D	Mise en pratique des expériences	75
	D.1 Mise en pratique du scénario 1	75
E	Conclusion	85

A. Introduction

Nous avons présenté dans le chapitre précédent l'objectif du développement d'une expérience spécifique en laboratoire, permettant la reproduction du chargement thermique d'un RIA par chauffage Laser. Afin de dimensionner au mieux les expériences, notamment les conditions de chargement thermique par le faisceau laser, il est important de réaliser en premier lieu une étude théorique sur le comportement de l' UO_2 lors de l'irradiation par laser. Ainsi une première étape de la thèse a consisté à développer un modèle numérique prenant en compte l'échauffement d'un échantillon en fonction des paramètres d'irradiation utilisés, tels que la puissance, la taille du faisceau, le temps d'exposition et des conditions expérimentales (taille de la pastille, impact du porte-échantillon). Ces simulations se basent sur les propriétés optiques et thermiques de l' UO_2 , les caractéristiques de la source laser, les conditions de chargement thermique, et l'environnement tel que la géométrie et les matériaux constitutifs du porte-échantillon ou l'enceinte de la chambre d'expérience (chambre à vide).

Pour présenter ce modèle, nous décrirons en premier lieu les propriétés de l' UO_2 sur lesquelles nous nous sommes basés. Les autres matériaux utilisés dans les modèles numériques, tels que la zircone pour les porte-échantillons, le zircaloy pour la gaine autour de la pastille, le saphir pour les hublots, et l'alliage métallique utilisé pour l'enceinte de la chambre à vide seront décrits en annexe A. Toutes ces propriétés basées sur des données issues de la bibliographie seront intégrées dans les modèles numériques présentés dans cette partie. Dans certains cas, nous mettrons en évidence le manque de données dans la littérature et la nécessité de réaliser des expériences spécifiques pour estimer certains paramètres. Dans une seconde partie de ce chapitre, nous présenterons les modèles numériques développés sur le logiciel COMSOL et utilisés pour dimensionner la source Laser, en particulier la puissance nécessaire à fournir pour reproduire les cas de chauffes représentatifs de la thermique d'un RIA. La simulation sera également utilisée pour dimensionner la chambre expérimentale et les porte-échantillons du point de vue thermique, compte tenu des températures d'utilisation extrêmement élevées envisagées.

B. Propriétés de l' UO_2

La plupart des données thermophysiques de l' UO_2 que nous avons utilisées sont issues d'un article de synthèse rédigé par J.K. Fink [112]. Nous exploiterons aussi les valeurs tirées d'un Handbook édité par l'IAEA (International Atomic Energy Agency) qui synthétise les données issues de la littérature et propose des recommandations sur la base du travail d'un groupe d'experts [113]. Nous nous cantonnerons aux propriétés de l' UO_2 dans sa phase solide, bien que l'intérêt des techniques lasers soit de pouvoir explorer les propriétés à très haute température en phase liquide ou gazeuse. En ce qui concerne les données sur les propriétés optiques, nous avons dû effectuer des recherches plus approfondies sur le sujet, et

nous verrons que les données publiées sont assez limitées, voire contradictoires.

Cette section ne présentera que les propriétés de l'UO₂ non enrichi et non irradié, correspondant aux échantillons utilisés dans les expériences décrites au chapitre IV. Les propriétés de l'UO₂ utilisé en centrale nucléaire et l'évolution de celles-ci au cours de son cycle de vie sont le sujet de nombreuses études. L'Handbook de l'IAEA étant à nouveau très complet, les valeurs ne seront cependant pas retranscrites dans ce document. Néanmoins, malgré des variations, l'ordre de grandeur est identique pour les propriétés de l'UO₂ selon ses états. Nos calculs seront donc moins précis pour du combustible irradié, cependant ils resteront représentatifs. Nous reviendrons plus en détail dans les perspectives à la fin de la thèse sur cet aspect.

B.1. Propriétés thermo-physiques

B.1.a. Température de fusion et de vaporisation

La valeur de la température de fusion, T_f acceptée et reprise par l'ensemble de la communauté [114] est :

$$T_f = 3116 \pm 25 \text{ K} \quad (\text{II.1})$$

Néanmoins on peut citer des travaux expérimentaux qui dans le cas d'application d'une chauffe par Laser sous vide de l'UO₂, ont montré des traces de fusion locale pour des températures proches de 3000 K [91].

Dans nos travaux nous considérerons que l'UO₂, à une température inférieure à la température de fusion, est solide et n'est pas soumis à des phénomènes de vaporisation ou de sublimation. En effet, nous observons un écart important (environ 700°) entre la température de fusion et celle de vaporisation T_v :

$$T_v = 3815 \text{ K} \quad (\text{II.2})$$

B.1.b. Enthalpie de fusion

L'enthalpie de fusion est d'après [113] :

$$\Delta H_f = 70 \pm 4 \text{ kJ/mol} \quad (\text{II.3})$$

B.1.c. Masse molaire

$$M = 270,0277 \pm 0,0006 \text{ g/mol} \quad (\text{II.4})$$

Cette valeur est rapportée par la Commission on Isotopic Abundances and Atomic Weights (CIAAW) [115]. La commission depuis 1899 définit au niveau international, les valeurs recommandées pour la composition isotopique de chaque élément et leur poids atomique. Celle-ci ne prend pas en compte les différents isotopes de l'UO₂.

Une correction pourrait être nécessaire pour une utilisation du modèle numérique sur du matériau enrichi ou irradié.

B.1.d. Masse volumique

La masse volumique ρ , en Mg/m^3 , présente une dépendance en température qui peut s'exprimer dans la gamme 298,15 à 3120 K par [113],

$$\rho(T) = \rho_{273} \cdot \left(\frac{L_{273}}{L(T)} \right)^3 \quad (\text{II.5})$$

avec la densité à 273 K égale à $\rho_{273} = 10,963 \text{ Mg}/\text{m}^3$. $L(T)$ et L_{273} , décrivent l'allongement de la pastille en fonction de sa température. Le rapport de $L(T)/L_{273}$, décrit la dilation thermique qui sera détaillé dans les équations II.20 et II.21. La courbe de la figure II.1 décrit cette évolution avec la température. On peut noter dans notre gamme de température d'intérêt, de l'ambient à plus de 2000 K, une variation significative de l'ordre de 10%.

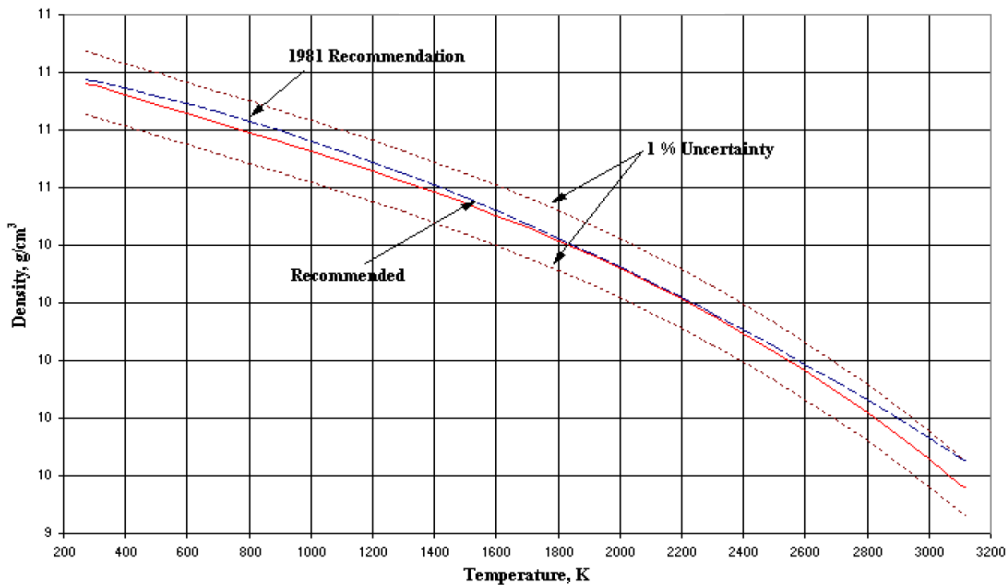


FIGURE II.1. – Evolution de la densité de l' UO_2 en fonction de la température [113]

B.2. Propriétés thermiques

B.2.a. Capacité thermique

La capacité thermique molaire présente une évolution non-linéaire avec la température pouvant être décrite par le polynôme suivant [113] :

de 298,15 à 3120 K,

$$C_p(T) = 52,1743 + 87,951\tau - 84,2411\tau^2 + 31,542\tau^3 - 2,6334\tau^4 - 0,71391\tau^{-2} \quad (\text{II.6})$$

Avec $\tau = T/1000$, T étant la température en K, et C_p la capacité thermique, en $J.mol^{-1}.K^{-1}$. L'incertitude est de $\pm 2\%$ de 298,15 K à 1800 K, et se dégrade pour atteindre une valeur de 13% à partir de ce seuil. On peut également noter dans les données reportées, la présence d'une transition de phase à 2670 K avec comme conséquence une incertitude plus élevée autour de cette température. Certaines données suggèrent une discontinuité de C_p à cette température.

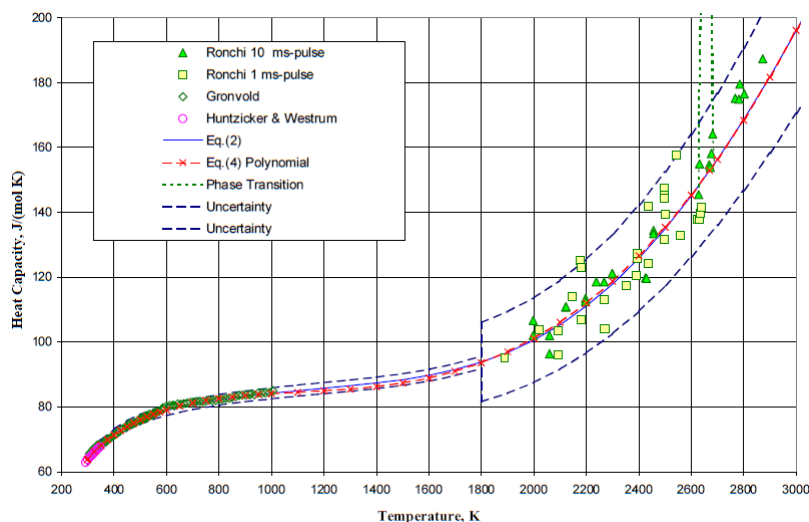


FIGURE II.2. – Capacité thermique de l'UO₂ en fonction de la température [113]

B.2.b. Conductivité thermique

La conductivité thermique est généralement déterminée par des mesures de diffusivité, notamment en utilisant les méthodes flash-laser, et est décrite par le polynôme ci-dessous [113] :

de 298.15 à 3120 K,

$$\kappa(T) = \frac{100}{7,5408 + 17,692\tau + 3,6142\tau^2} + \frac{6400}{\tau^{\frac{5}{2}}} e^{-\frac{16,35}{\tau}} \quad (\text{II.7})$$

Avec $\tau = T/1000$, T étant la température en K, et κ la conductivité thermique en $W.m^{-1}.K^{-1}$. L'incertitude de cette formule est de 10% de la température ambiante jusqu'à 2000 K puis augmente brusquement à 20% comme on peut le voir sur la figure II.3. Cette équation correspond à la conductivité thermique de l'UO₂ pour une porosité de 5%. Cette porosité varie grandement dans le cas d'une pastille irradiée.

Une autre équation relie la conductivité thermique à la température et à la porosité [113] :

$$\kappa_0 = \frac{\kappa_p}{[1 - \alpha p]} \quad (\text{II.8})$$

$$\alpha = 2,6 - 0,5\tau \quad (\text{II.9})$$

Avec $\tau = T/1000$, T étant la température en K, p le ratio de porosité (à 0, l'échantillon est "entièrement dense"), κ_p la conductivité thermique de l'UO₂ avec une porosité de p, et κ_0 la conductivité thermique pour un échantillon "entièrement dense".

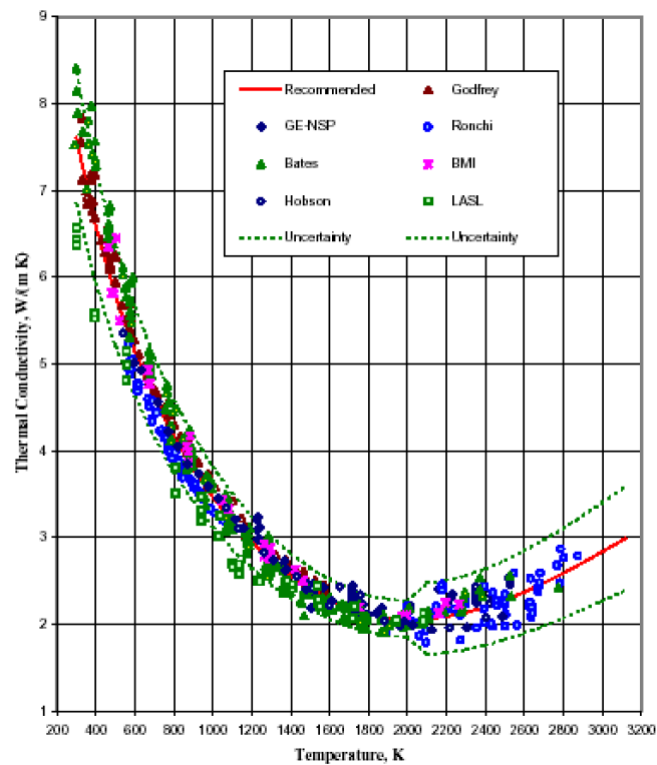


FIGURE II.3. – Conductivité thermique en fonction de la température [113]

B.3. Propriétés Optiques

Les propriétés optiques de l'UO₂ sont d'une importance capitale pour ce travail de thèse. Elles joueront un rôle à la fois dans la partie expérimentale pour la mesure de la température par les différents capteurs utilisés (caméra IR, pyromètres), et dans les simulations, par l'absorption du faisceau laser et les pertes par rayonnement. Ces propriétés sont fortement dépendantes de l'état de surface (rugosité, oxydation, ...) et peuvent dépendre de la température. La littérature est la plus complète et la plus précise à la longueur d'onde de 630 nm. Les valeurs issues de celle-ci seront

utilisées cependant avec réserve. En effet la longueur d'onde du laser utilisé est de 1080 nm, et l'instrumentation (caméra IR, pyromètre) fonctionne dans l'infrarouge un peu plus lointain. Les expériences doivent ainsi nécessairement passer par une étape de calibration pour déterminer au mieux ces valeurs dans les conditions expérimentales.

B.3.a. Emissivité

L'émissivité totale, ϵ^h , varie peu avec la température d'après les données, avec une valeur recommandée [113] de 1000 à 3120K :

$$\epsilon^h = 0,85 \pm 0,05 \quad (\text{II.10})$$

On note cependant une dispersion des valeurs reportées autour de cette recommandation, comme on peut l'observer sur la figure II.4. Les valeurs rapportées sont en majorité comprises entre 0,6 et 0,95 et au premier abord indépendantes de la longueur d'onde étudiée et de la température de l'échantillon. Pour les travaux de cette thèse nous utiliserons de l'instrumentation infrarouge pour des mesures de températures, comme cela sera décrit dans la suite du document. La connaissance de l'émissivité étant cruciale pour le fonctionnement de cette instrumentation et suite à l'analyse des sources bibliographiques, il apparaît important de réaliser une étude préliminaire sur l'émissivité de l'UO₂ dans l'infra-rouge.

Il existe également quelques données sur l'émissivité spectrale en fonction de la température [116, 117] de 300 jusqu'à 7000 K, obtenues à une longueur d'onde de $\lambda = 630\text{nm}$ avec une évolution définie par :

$$\varepsilon(\lambda = 630\text{nm}) = 0,836 + 4,321 \cdot 10^{-6}(T - 3120) \quad (\text{II.11})$$

Les valeurs dans le proche infrarouge ne sont cependant pas connues.

B.3.b. Indices de réfraction

Des indices de réfraction ont été déterminés dans la littérature à partir de mesures de réflectivité en fonction de l'angle et de la polarisation. Il existe cependant très peu de données et celles disponibles le sont sur des monocristaux d'UO₂ (Bober, Singer et Wagner) [118, 119] à température ambiante et sur de l'UO₂ liquide entre 3100 et 3600 K.

A 752,5 nm (la longueur d'onde la plus proche de 1080 nm dans les résultats de Bober, Singer et Wagner) pour $T = 300\text{K}$:

$$n = 2,24 \pm 10\% \quad (\text{II.12})$$

$$k = 0,7 \pm 20\% \quad (\text{II.13})$$

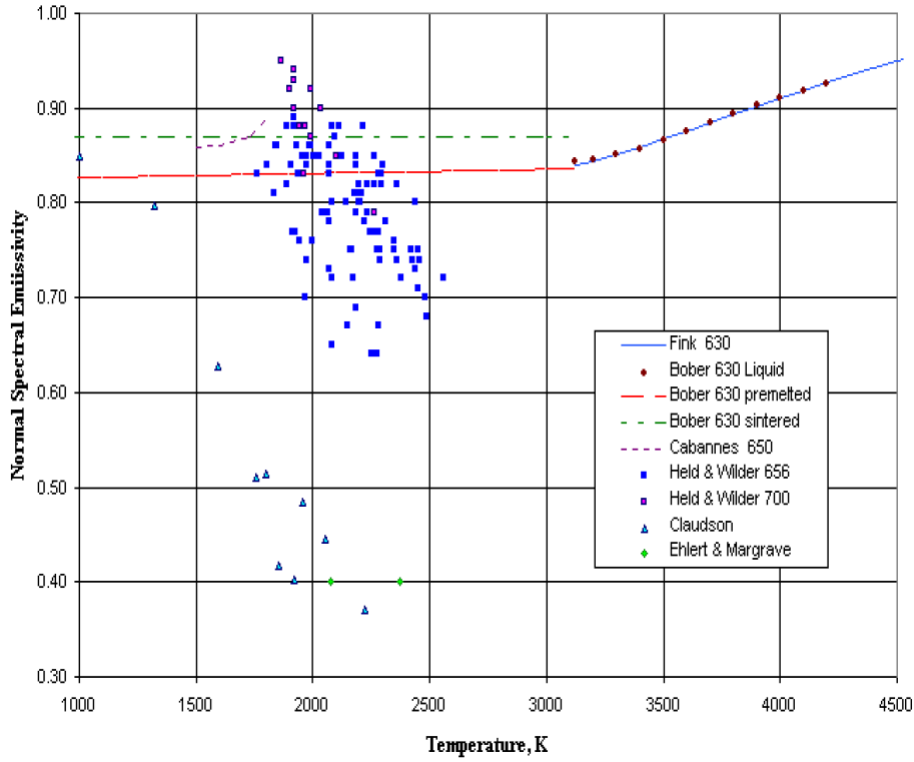


FIGURE II.4. – Emissivité totale de l'UO₂ en fonction de la température [113]

A 752,5nm et pour $T = 3100K$ (ces valeurs sont pour de l'UO₂ liquide)

$$n = 1,68 \pm 10\% \quad (\text{II.14})$$

$$k = 0,95 \pm 20\% \quad (\text{II.15})$$

avec n la partie réelle de l'indice de réfraction et k est la partie imaginaire de l'indice de réfraction, tel que $\underline{n} = n - ik$ avec \underline{n} , l'indice de réfraction complexe.

On relie k le coefficient d'absorption à la profondeur de pénétration à une longueur d'onde précise par :

$$\delta_p = \lambda / (4 \cdot \pi \cdot k) \quad (\text{II.16})$$

Avec δ_p , la profondeur de pénétration en m. Ainsi sur la base de ces valeurs, la profondeur de pénétration de notre faisceau laser (à 1080 nm) serait à $T = 300 K$ de :

$$\delta_p = 122 \cdot 10^{-9} m \quad (\text{II.17})$$

Cette profondeur de pénétration d'environ 100 nm est faible, on qualifiera le chauffage de "surfamique" (en opposition au chauffage "volumique"). Une autre référence [120], reporte des mesures d'absorption de l'UO₂ en fonction de l'énergie des photons à différentes températures. Les échantillons d'UO₂ utilisés sont ici des monocristaux d'UO₂ d'épaisseur 30 μm et polis. On voit, ainsi dans le graphique

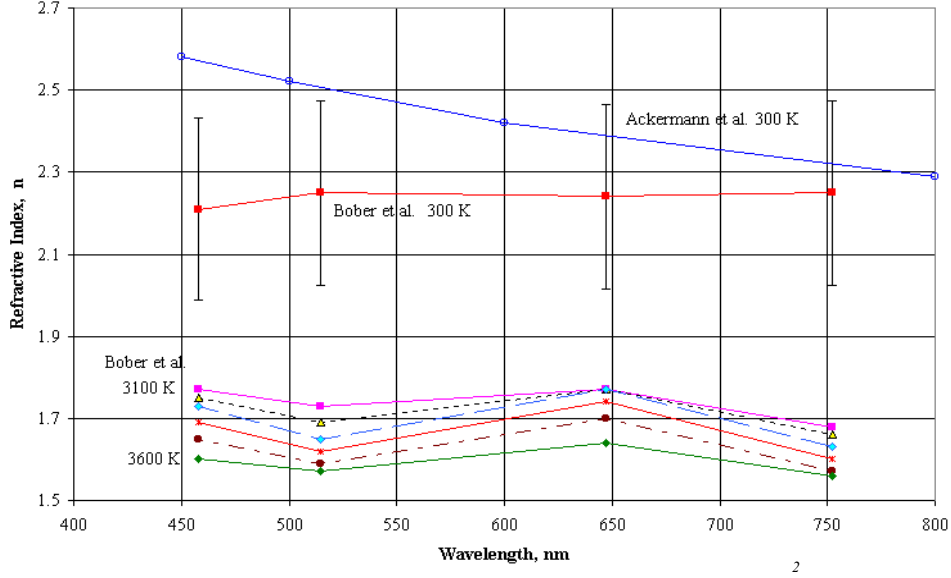


FIGURE II.5. – Indice optique réel de l’UO₂ à différentes températures en fonction de la longueur d’onde [113]

ci-dessous (Fig II.7), qu’au dessus de 2 eV (correspondant à la largeur de bande interdite) et à température ambiante, l’UO₂ est très absorbant.

Pour des photons moins énergétiques l’UO₂ a une caractéristique de semi-transparence avec une absorption de $300-400\text{ cm}^{-1}$ correspondant à une profondeur de pénétration du rayonnement d’environ $30\text{ }\mu\text{m}$. Sachant que 2 eV correspondent à une longueur d’onde de 620 nm et que le laser utilisé dans notre étude fonctionne à 1080 nm, soit environ 1 eV. Ces valeurs entrent en conflit avec celles des autres sources et il semble difficile d’après ces données de pouvoir utiliser les valeurs issues des travaux de Bober et al. tant l’écart est important entre les deux études. Toujours en étudiant l’article de Ruello [120], nous pouvons observer que le niveau d’absorption augmente avec la température, en lien avec une forte diminution de la largeur de bande interdite (Fig II.8). En extrapolant ces valeurs, on s’attend à une très forte augmentation du coefficient d’extinction à haute température.

Dans son article, Hongliang [121] calcule par des méthodes ab-initio les propriétés optiques liées à la structure électronique, dont la réflectivité de l’UO₂ à température ambiante pour des énergies comprises entre 0 et 30 eV. Pour 1,14 eV, soit 1080 nm (la longueur d’onde du laser dans nos travaux) :

$$R = 0,17 \pm 0,01 \quad (\text{II.18})$$

Dans cette même référence et par la même méthode il détermine que pour 1 eV :

$$n = 2,4 \pm 0,1 \quad (\text{II.19})$$

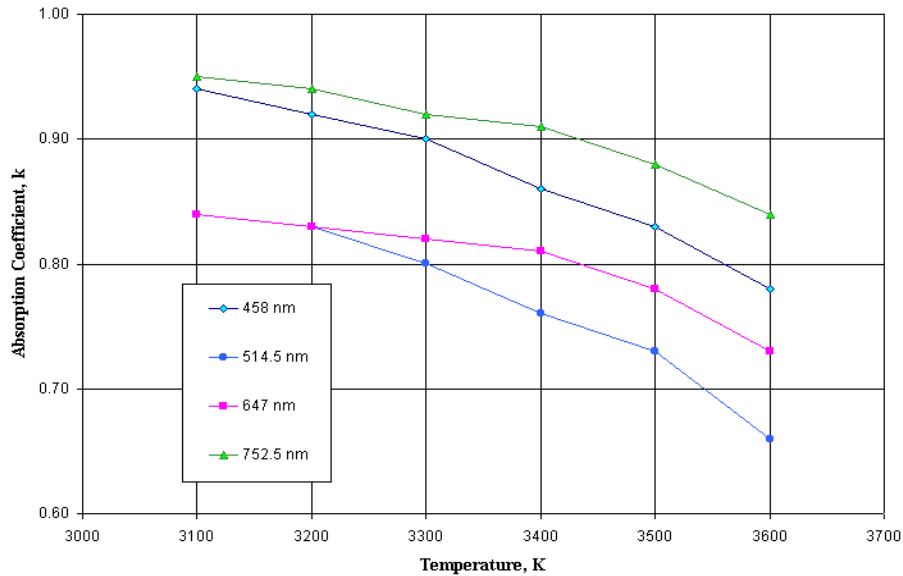


FIGURE II.6. – Indice optique imaginaire de l'UO₂, ou coefficient d'extinction, à différentes longueurs d'onde en fonction de la température [113]

Cette valeur se rapproche des résultats de Bober (Eq II.12). En revanche, pour 1 eV, Hongliang calcule que le matériau est transparent, c'est à dire qu'il aurait une absorption nulle à 1080 nm. L'UO₂ deviendrait faiblement absorbant seulement à partir de 2,5 eV (après le gap mis en évidence sur la figure II.7). Hongliang pour ses calculs travaille dans un cas idéal, avec une structure cristalline parfaite sans défaut. Ces propriétés sont loin du matériau réel, ainsi, la différence dans la littérature entre ces valeurs théoriques et celle mesurées est compréhensible.

La conclusion de cette étude des connaissances de la communauté scientifique quant à l'absorption de l'UO₂ est que ces propriétés sont mal connues. Les valeurs seront à utiliser avec une extrême précaution. Dans cette thèse nous étudierons dans nos simulations l'impact sur la température de l'UO₂ en chauffe selon que le coefficient d'extinction est très élevé (chauffe surfacique) ou modéré (chauffage volumique). Des études ultérieures seront cependant nécessaires pour lever l'incertitude sur cette propriété du matériau.

B.4. Propriétés Mécaniques

Ces propriétés ne sont pas utilisées pour les simulations COMSOL. En revanche, elles permettent une approche du comportement thermomécanique de l'UO₂ notamment vis-à-vis de son intégration dans un porte-échantillon et lors d'une rampe thermique rapide.

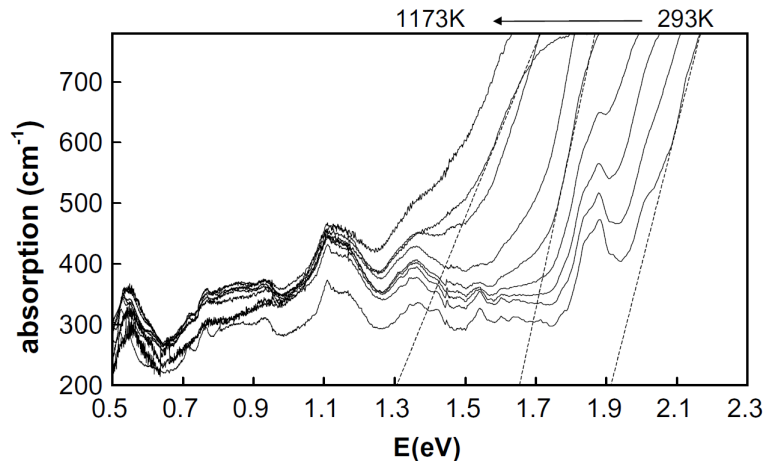


FIGURE II.7. – Absorption de l'UO₂ en fonction de l'énergie [120]

B.4.a. Dilatation thermique

Toujours d'après [113], nous avons de 273,15 à 923 K :

$$\frac{L(T)}{L_{273}} = 9,973 \cdot 10^{-1} + 9,082 \cdot 10^{-6}T - 2,705 \cdot 10^{-10}T^2 + 4,391 \cdot 10^{-13}T^3 \quad (\text{II.20})$$

puis de 923 à 3120 K :

$$\frac{L(T)}{L_{273}} = 9,9672 \cdot 10^{-1} + 1,179 \cdot 10^{-5}T - 2,429 \cdot 10^{-9}T^2 + 1,219 \cdot 10^{-12}T^3 \quad (\text{II.21})$$

Avec pour les deux équations : T, la température en K, L(T), la longueur de l'échantillon en *m* et *L*₂₇₃ la longueur de l'échantillon à 273 K en *m*.

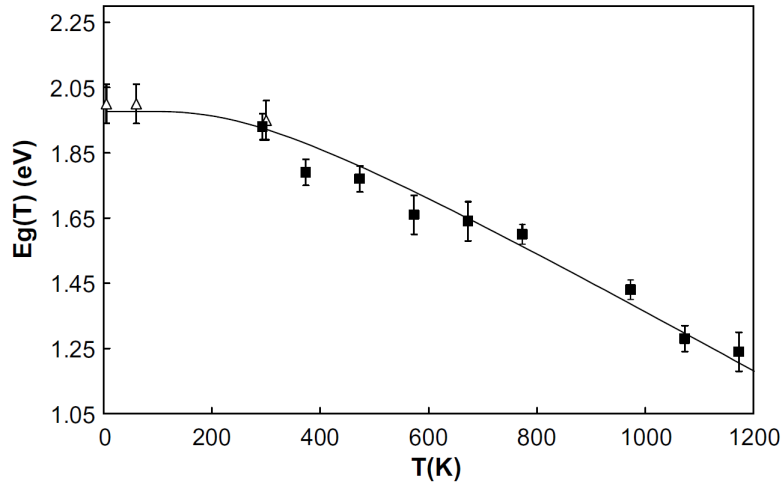


FIGURE II.8. – Valeur de la bande interdite de l'UO₂ en fonction de la température [120]

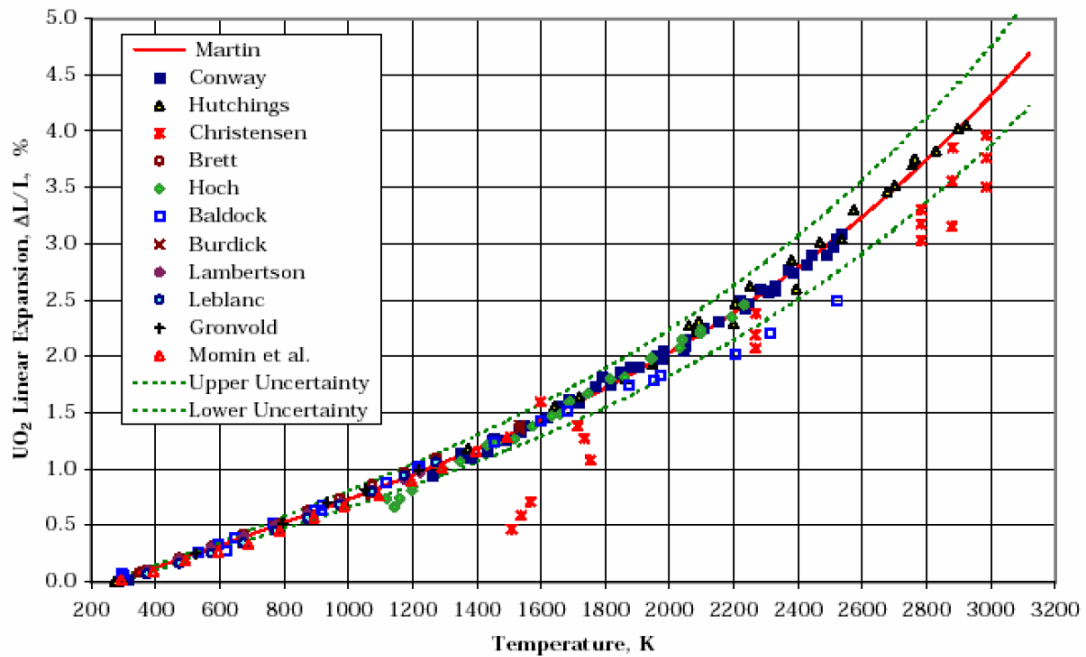


FIGURE II.9. – Ratio de dilatation de l'UO₂ en fonction de la température [113]

Entre la température ambiante et la température de pic ciblée par les reproductions de chauffe type-RIA c'est à dire environ 2200 K, l'échantillon d'UO₂ se dilate de $2,5\% \pm 0,25\%$ (Fig II.9). Il est important de prendre cela en compte dans la conception du porte-échantillon, notamment par la présence de jeux permettant d'adapter la dilatation de l'UO₂, ou par des matériaux ayant des propriétés mécaniques permettant de résister aux contraintes engendrées par cette dilatation. Ces

choix s'effectuent en fonction des conditions aux limites souhaitées.

B.4.b. Module d'Young

Le module d'Young, aussi appelé module de traction, de l' UO_2 est d'environ $180 \pm 20 \text{ GPa}$. Cette valeur, à l'instar de la majorité des céramiques, est le signe d'une grande résistance aux contraintes de compression et de traction, en revanche il est aussi souvent le symptôme d'un comportement fragile. C'est-à-dire que le matériau va résister à de fortes contraintes, puis avoir une rupture nette avec pas ou peu de déformation une fois le point de rupture atteint. Il faut donc s'attendre dans nos expériences à une possibilité de fragmentation de l'échantillon, et le prendre en compte pour éviter la dispersion de matière.

Des données plus précises issues de [122] utilisent un paramètre D (compris entre 0 et 1), pour prendre en compte la dégradation du matériau.

De 450 à 1600 K,

$$Y(T) = 2,334 \cdot 10^{11} [1 - 2,752(1 - D)] [1 - 1,0915 \cdot 10^{-4}T] \pm 0,06 \cdot 10^{11} \quad (\text{II.22})$$

Avec Y, le module de Young en N.m^{-2} , T la température en K et D la densité de l' UO_2 (fraction de sa densité théorique).

De 1600 à 3113 K

$$Y(T) = 2,334 \cdot 10^{11} [1 - 2,75(1 - D)] [1 - 1,091 \cdot 10^{-4}T] \pm 0,06 \cdot 10^{11} + Y(T - 1600) / 6052,6 \quad (\text{II.23})$$

B.4.c. Coefficient de Poisson

ν , le coefficient de Poisson (sans unité) à température ambiante est donné par [122] :

$$\nu = 0,311 \pm 0,005 \quad (\text{II.24})$$

Si le coefficient de Poisson est théoriquement limité entre -1 et 0,5, la tranche entre -1 et 0 correspond à une catégorie très particulière de matériaux appelé auxétique. Contrairement aux matériaux dits "conventionnels" qui lorsqu'ils sont étirés vont s'affiner (phénomène particulièrement visible en utilisant un élastique dont le coefficient de Poisson est de 0,499), les matériaux auxétiques vont s'épaissir. Dans le cas de l' UO_2 , son coefficient de Poisson est aux alentours de 0,3, cela correspond à la gamme standard pour un matériau conventionnel isotrope mécaniquement (entre 0 et 0,5).

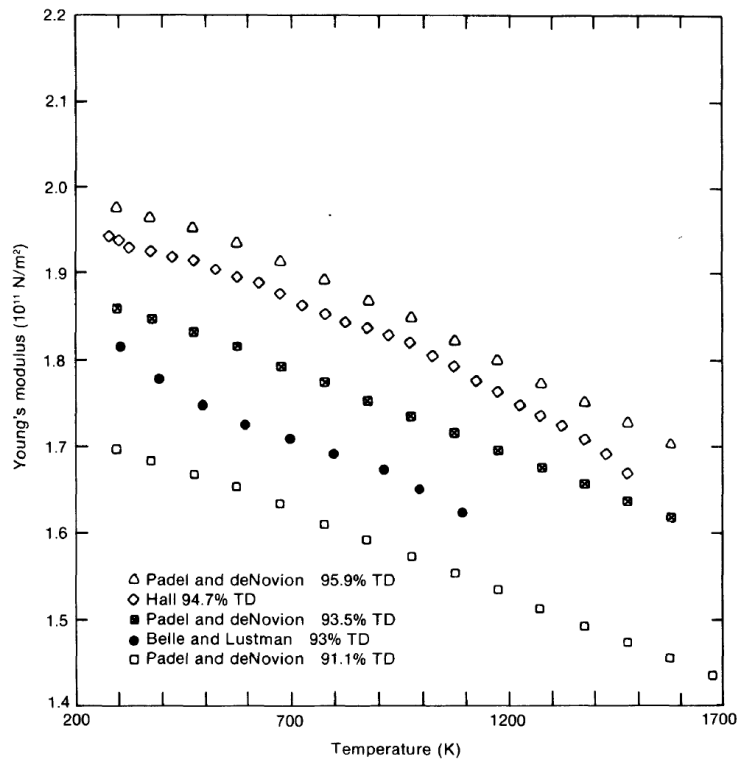


FIGURE II.10. – Module d'Young de l' UO_2 en fonction de la température et du coefficient de dégradation D [122]

C. Présentation du modèle numérique

Suite à la présentation des propriétés thermiques, mécaniques, physiques et optiques des différents matériaux d'intérêt pour notre étude (pastille, gaine et matériaux environnants), nous présentons dans la suite de ce chapitre le modèle numérique sur lequel nous nous sommes appuyés pour les études de faisabilité et le dimensionnement des expériences. Ces simulations ont principalement été orientées vers 2 scénarios d'intérêt identifiés au début de la thèse que nous allons décrire.

C.1. Présentation générale du modèle

Le modèle numérique a été conçu à partir du logiciel COMSOL Multiphysics® 5.4 [123]. Ce logiciel utilise la méthode des éléments finis pour résoudre des équations différentielles dans les domaines de l'électromagnétisme, la mécanique des structures, l'acoustique, la mécanique des fluides, le transfert thermique, le génie chimique et les phénomènes couplés. Pour la thèse, le module "Transfert de chaleur dans les solides" a été utilisé.

Ce module prend en compte entre autres les phénomènes de rayonnement, de convection, de conduction et de changement de phase. Cependant certaines

hypothèses peuvent être établies pour négliger certains phénomènes.

Pour une modélisation numérique de ce type, il faut :

- Rassembler les propriétés du ou des matériau(x) utilisé(s). Cela a été réalisé dans la première partie du chapitre
- Définir le système et sa géométrie
- Définir le maillage
- Insérer les interactions et phénomènes physiques que l'on souhaite étudier. Ici, nous travaillons uniquement sur les "transferts de chaleur dans les solides". Ce module prend en compte entre autres les phénomènes de rayonnement, de convection, de conduction et de changement de phase. Cependant certaines hypothèses peuvent être établies pour négliger certains phénomènes.

Pour chaque modèle dans la suite du chapitre, nous présenterons la géométrie du système et son maillage.

Pour simplifier le modèle et/ou réduire le temps de calcul, des hypothèses communes à tous nos modèles ont été adoptées :

- La convection est négligée, l'échantillon étant dans un porte-échantillon sous vide, les pertes thermiques se font uniquement par rayonnement et par conduction. Ceci pourra être revu pour les études sous pression partielle d'Argon.
- La profondeur de pénétration du faisceau laser de 1080 nm est suffisamment faible (Eq.II.17) pour que nous considérons le chauffage comme uniquement surfacique. Une étude sera néanmoins menée pour évaluer l'impact d'un chauffage plus en profondeur, en accord avec l'article de Ruello [120] présenté précédemment, notamment dans le cas d'échantillons fins.
- Tous les matériaux seront considérés comme homogènes, sans impureté et isotropes.
- Les matériaux n'ont pas d'interaction entre eux autre que thermique (mécanique, chimique).
- L'évaporation de matière et les changements de phase sont négligés car les températures visées sont inférieures aux températures de fusion.

Certaines simulations utiliseront des hypothèses particulières, qui seront explicitées et justifiées.

A partir des hypothèses, l'équation temporelle non-linéaire de la chaleur résolue dans notre modèle numérique est la suivante :

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} - \nabla \cdot (\kappa \nabla T) = Q \quad (\text{II.25})$$

Avec ρ la masse volumique en $kg.m^{-3}$, C_p la capacité thermique en $J.m^{-1}.K^{-1}$, T la température en K, t le temps en s, κ la conductivité thermique en $W.m^{-1}.K^{-1}$ et Q , le terme source dans le matériau en $W.m^{-3}$. Ce terme source sera pris généralement nul, nous ne considérerons que des flux de chaleur entrants pour modéliser le chauffage laser. Dans ce cas sur la surface de l' UO_2 le flux de chaleur entrant (q_0 en $W.m^{-2}$) sera décrit par l'expression suivante dans laquelle nous séparons les

contributions temporelles et spatiales :

$$q_0(x, y, z, t) = A \cdot f(t) \times I(x, y, z) \quad (\text{II.26})$$

A est l'absorption (1-R), f(t) la fonction temporelle du dépôt de puissance et I(x,y,z) sa répartition spatiale sur la surface concernée. Par exemple dans le cas d'un faisceau Gaussien surfacique, un système de coordonnées 2D est suffisant pour le définir de manière spatiale et temporelle :

$$q_0(r, t, T) = \frac{2 \cdot (1 - R(T)) \cdot P(t)}{\pi \cdot \omega^2} \cdot \exp\left(-2\frac{r^2}{\omega^2}\right) \quad (\text{II.27})$$

Avec R, le coefficient de réflexion du matériau (sans unité), P la puissance laser incidente en W, ω le rayon à $1/e^2$ du faisceau gaussien en m, t le temps en s, r le rayon en m (avec $r = 0$ au centre du faisceau gaussien), T la température en K et q_0 le flux de chaleur entrant en $W.m^{-2}$.

Le coefficient de réflexion du matériau en incidence normale est calculé par la relation suivante :

$$R(T) = \frac{(n(T) - 1)^2 + k(T)^2}{(n(T) + 1)^2 + k(T)^2} \quad (\text{II.28})$$

Avec n et k les indices de réfraction réels et imaginaires du matériau. En utilisant les équations II.12 à II.15, nous avons défini n et k à 752,5 nm, en fonction de la température (de 300 à 3100 K) par des fonctions linéaires telles que :

$$n(T) = \frac{1,68 - 2,24}{3100 - 300} \cdot T + \left(2,24 - 300 \cdot \frac{1,68 - 2,24}{3100 - 300}\right) \quad (\text{II.29})$$

et

$$k(T) = \frac{0,95 - 0,7}{3100 - 300} \cdot T + \left(0,7 - 300 \cdot \frac{0,95 - 0,7}{3100 - 300}\right) \quad (\text{II.30})$$

Ainsi, pour l' UO_2 la valeur du coefficient de réflexion est comprise entre 0,185 et 0,166 (Voir Fig. II.11), ce qui correspond à la valeur (Eq. II.18) calculée par Hongliang. A noter que ces valeurs sont théoriques et qu'il sera nécessaire d'affiner, par exemple en fonction de l'état de surface du matériau.

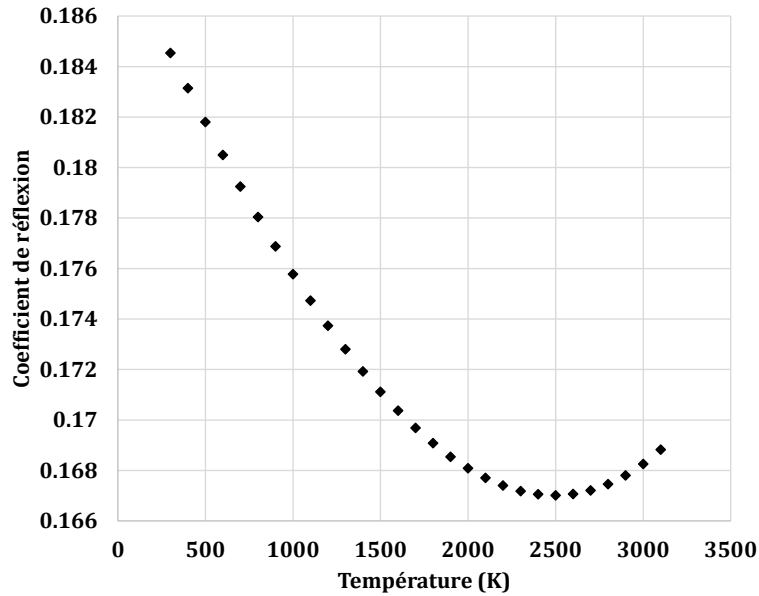


FIGURE II.11. – Coefficient de réflexion de l’UO₂ en fonction de la température

En ce qui concerne les conditions aux limites du domaine de calcul, nous considérons dans nos simulations des conditions de rayonnement avec une température ambiante de 20°C et les émissivités définies précédemment. Enfin pour correspondre aux temps des tests REP-Na, les dépôts de puissance considérés dans le modèle seront de l’ordre de quelques dizaines de millisecondes.

C.2. Scénario 1 : Simulation d’une chauffe de pastille sans gaine

Le premier scénario que nous avons simulé est celui d’une chauffe d’une pastille sans gaine par sa périphérie (c’est à dire la partie cylindrique de la pastille), tel que représenté sur la figure II.12. Une pastille portée à une température initiale d’intérêt (1200°C par exemple) subit une irradiation homogène brève et intense sur sa périphérie pour reproduire des conditions de RIA. Avant d’étudier l’aspect pratique de cette irradiation laser nous avons simulé ces transitoires thermiques en prenant en compte un dépôt de puissance homogène sur la périphérie. Cette simulation ne représente qu’une pastille, sans porte-échantillon. La géométrie de la pastille est découpée en une dizaine de milliers de mailles triangulaires dont les dimensions varient d’environ une dizaine de microns à la surface du domaine, où l’irradiation laser a lieu, jusqu’à 500 μm en cœur de pastille, où il est moins crucial d’avoir une bonne résolution. L’objectif est de réaliser une étude paramétrique pour estimer la puissance nécessaire pour atteindre une température de 2000°C en périphérie de pastille pour une durée de chauffe de 20 et de 80 ms (cela correspond respectivement aux limites basse et haute de la durée de l’élévation thermique lors d’un RIA).

	T° initiale (°C)	T° maximale (°C)	Durée de la chauffe (ms)	Puissance nécessaire (W)
Chauffe n°1	1200	2000	80	3000
Chauffe n°2	1200	2000	20	5500

TABLE I. – Tableau récapitulatif des chauffes présentées pour le scénario 1

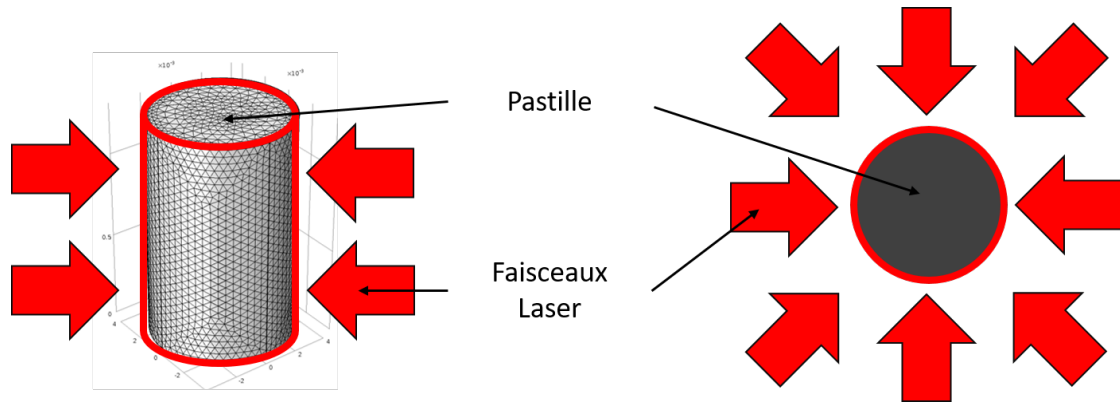


FIGURE II.12. – Schéma du scénario 1, représentant une pastille exposée de manière homogène à des faisceaux laser sur sa partie cylindrique

Nous présentons deux exemples de chauffe, tel que proposé dans le tableau I. Sur la figure II.13, la pastille a reçu un flux homogène sur sa périphérie de 3000 W pendant 80 ms. La température de l'échantillon s'élève rapidement en périphérie pour atteindre 2000°C. Tout d'abord, nous obtenons à partir de ces résultats numériques les niveaux de puissance incidente nécessaires pour atteindre les températures recherchées. Sur la figure II.14, la pastille a reçu un flux homogène sur sa périphérie de 5500 W pendant 20 ms. Pour les deux groupes de graphiques nous observons le profil radial thermique de la pastille, mettant en évidence des pics de température extrêmement marqués en raison du dépôt de puissance en périphérie. Ensuite nous observons comme attendu que les pics se situent en périphérie du matériau. Or dans la figure présentant la thermique d'un RIA dans le chapitre précédent (Fig I.22), le pic se situait légèrement en retrait de la surface et nous observions une baisse de la température à l'extrémité de la pastille (dûe au contact avec la gaine).

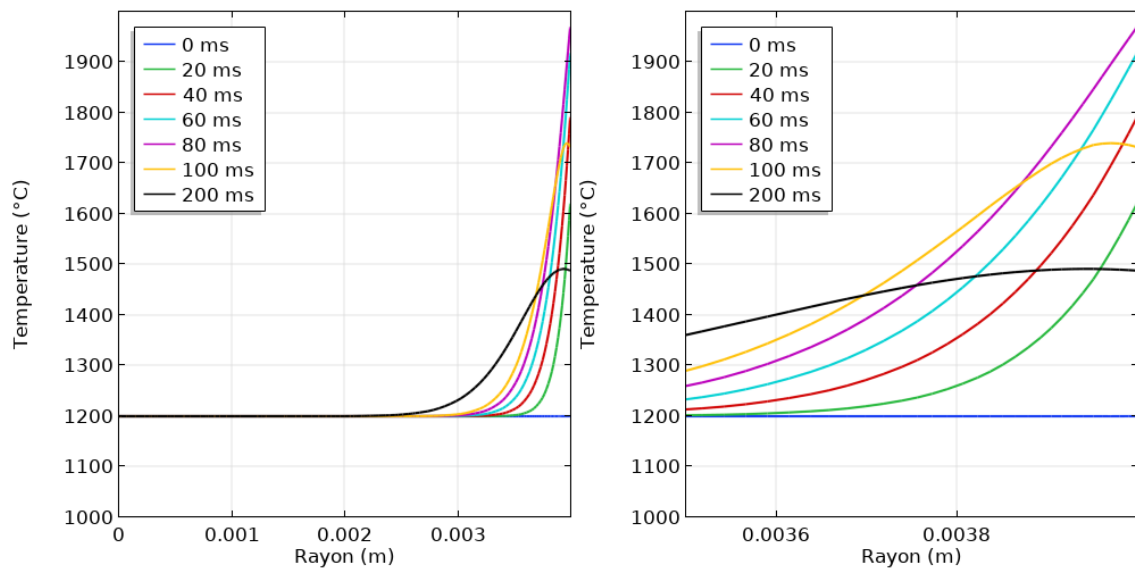


FIGURE II.13. – A gauche : le profil radial de la pastille à différents temps pour une chauffe de 3000 W de 80 ms. A droite : le profil radial de la pastille entre 3,5 et 4 mm pour les mêmes conditions

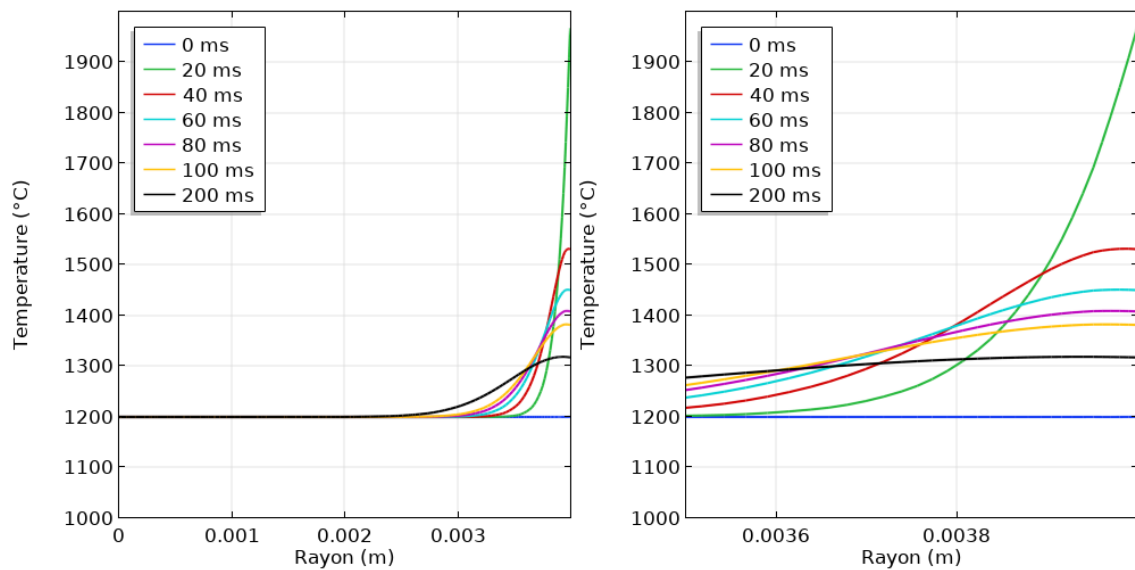


FIGURE II.14. – A gauche : le profil radial de la pastille à différents temps pour une chauffe de 5500W de 20ms. A droite : le profil radial de la pastille entre 3,5 et 4 mm à différents temps

Ainsi le scénario que nous proposons ne reproduit pas cette caractéristique (pic légèrement en profondeur du matériau et donc une température plus faible en surface). Il est cependant intéressant de décrire les points d'intérêts de ce scénario :

- La possibilité d’atteindre sur une durée de chauffe représentative d’un RIA, une température maximale de 2000°C
- la présence du pic de température en périphérie avec un impact quasi-nul sur le coeur de l’échantillon
- enfin tous ces avantages sont compatibles avec la géométrie standard d’une pastille d’ UO_2 .

Toutefois certains inconvénients sont à discuter :

- Le gradient reste très localisé près de la surface, comme nous l’avons déjà évoqué
- Le gradient dans la profondeur n’est pas contrôlable à souhait, car lié aux propriétés thermiques du matériau et à la géométrie du dépôt d’énergie
- S’il est simple de simuler un faisceau homogène sur la face circulaire d’un cylindre, la mise en œuvre expérimentale est moins évidente avec un faisceau initial gaussien.
- L’ordre de grandeur de la puissance laser est très élevée. En effet si la puissance laser est disponible et utilisée dans l’industrie (5500 W, certains lasers utilisés dans l’industrie atteignent les 10 kW), cela implique une complexité de mise en œuvre avec de tels niveaux de puissance.

Le premier scénario bien qu’intéressant pour une chauffe de pastille pleine semble avoir des limites quant à la simulation de la thermique d’un RIA. Trop exigeant en puissance laser, reproduction non fidèle des gradients de températures et à première vue complexe à mettre en place expérimentalement.

Le second scénario, présenté ci-dessous, consiste en une approche différente de la géométrie de la chauffe afin de travailler avec la gaine en Zircaloy et de reproduire de manière plus précise la position du pic de température et les gradients recherchés.

C.3. Scénario 2 : Simulation d’une chauffe de pastille avec gaine

Le second scénario concerne une pastille avec sa gaine. En effet en condition d’accident type-RIA, l’interaction pastille-gaine (IPG) est un élément important à prendre en compte. Lors d’un évènement de ce type l’IPG se caractérise, dans une première phase (très courte, quelques millisecondes), par des contraintes mécaniques importantes sur la gaine dues à la dilatation de la pastille, et dans une deuxième phase (plus lente, quelques secondes), par l’élévation de la température de la gaine par conduction avec la pastille, entraînant une crise d’ébullition de l’eau du circuit primaire. Ces deux phénomènes peuvent mener à une fissuration ou une fracturation de la gaine, libérant des Produits de Fission (PF) dans le circuit primaire. Ainsi, pour ces deux phases l’interaction pastille/gaine est un enjeu majeur et la possibilité de l’étudier ajoute de l’intérêt. Un chauffage périphérique de l’ UO_2 étant dans ce cas impossible du fait de la gaine métallique, nous proposons une autre géométrie pour le dépôt d’énergie. La solution envisagée est de mettre en forme le faisceau laser, pour lui conférer une forme d’anneau, puis de diriger les faisceaux annulaires

sur les faces inférieure et supérieure du cylindre (Fig II.15). Dans un premier temps, nous modéliserons le dépôt de puissance laser par un chauffage homogène sur la zone annulaire, avant d'étudier la mise en pratique.

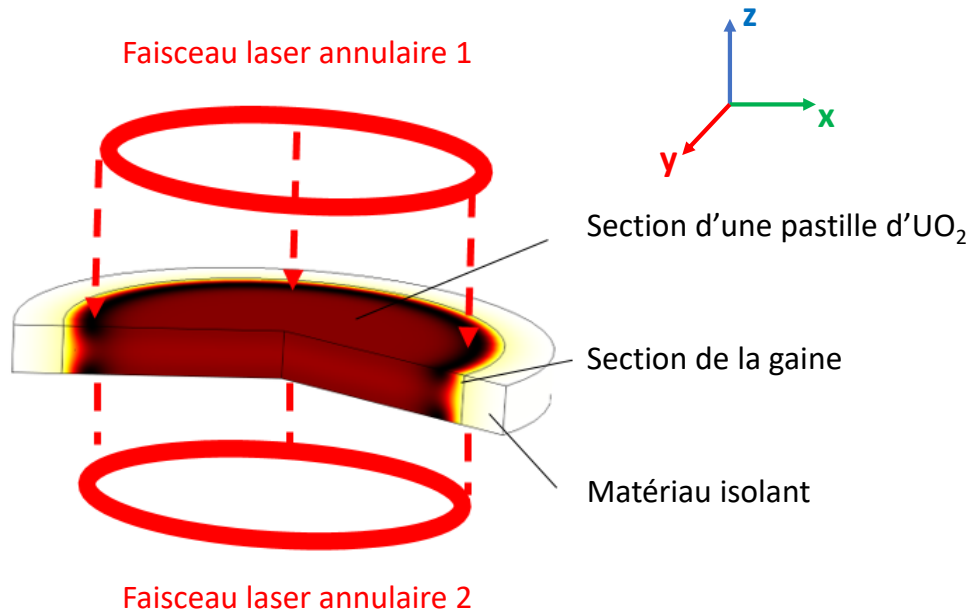


FIGURE II.15. – Graphique représentant la chauffe avec deux faisceaux annulaires

Comme pour le scénario précédent, une de nos priorités est de conserver une homogénéité relative en température dans l'échantillon en fonction de la hauteur et de se rapprocher d'une symétrie radiale. Nous avons posé l'hypothèse que le chauffage par Laser d'une pastille d'UO₂ était surfacique, c'est-à-dire, que dans ce scénario où le dépôt de puissance se fait via les faces planes de la pastille, un gradient important va apparaître en hauteur. Ce gradient apparaît d'autant plus facilement que l'UO₂ a une conductivité thermique faible. Si nous conservons une hauteur de pastille de 13 mm, pour une durée d'impulsion comprise entre 8,8 et 76,4 ms (si on se base sur les tests REP-Na), il est impossible de maintenir une homogénéité relative. Ainsi l'étude numérique paramétrique va nous aider à déterminer les épaisseurs d'échantillons optimales. L'échantillon doit être suffisamment épais pour assurer une tenue mécanique, mais suffisamment fin pour limiter les gradients internes.

Pour cette étude numérique nous avons fixé les dimensions de l'anneau de chauffage à

- rayon intérieur : 3,5 mm
- rayon extérieur : 4 mm (l'extrémité radiale de la pastille)

De plus le modèle numérique comprend la gaine. Celle-ci est au contact de la pastille sur toute la hauteur de cette dernière. Par l'utilisation de la gaine et d'une nouvelle

géométrie de chauffage, l'objectif est de ne plus avoir comme dans le scénario 1 un pic de température à la surface de la pastille mais à mi-distance entre le rayon intérieur et extérieur de l'anneau de chauffage.

Le maillage tel que présenté sur la figure II.16 sera fin (dizaines de microns) au niveau des zones exposées au laser. Le maillage s'espace dans la profondeur de l'échantillon et vers la gaine.

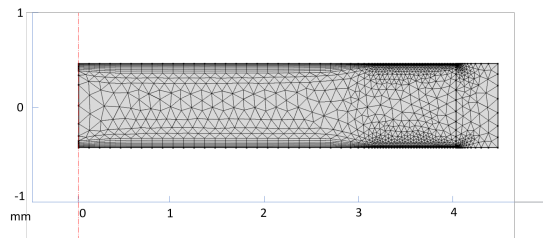


FIGURE II.16. – Schéma du maillage de l'échantillon dans le scénario 2

Nous allons présenter les résultats des simulations pour ce scénario, avec deux différents temps d'étude et des épaisseurs variables (tableau récapitulatif II).

Epaisseur (mm) \ Temps de chauffe (ms)	20 ms	80 ms
0,5 mm	400 W	225 W
1 mm		225 W
2 mm		225 W

TABLE II. – Tableau récapitulatif de la puissance utilisée pour les chauffés simulés pour le scénario 2 en fonction de l'épaisseur et de la durée

Le premier cas est une chauffe rapide de 20 ms (Fig. II.17), et le second plus lent, sera une chauffe de 80 ms (Fig. II.18). On étudiera aussi des pastilles de différentes épaisseurs dans le cas d'une chauffe lente : 0,5 mm, 1 mm et 2 mm (Fig. II.21 et Fig. II.20), pour observer les différences d'homogénéité dans la hauteur de l'échantillon d' UO_2 . Les objectifs de ces études sont d'abord, comme pour le scénario 1, de comparer les différences entre les deux durées de chauffés sur les gradients et sur la puissance nécessaire pour atteindre 2000°C , pour cela nous utiliserons les deux exemples de chauffés simulés pour une pastille de 0,5 mm. Le second objectif est de comparer les gradients de températures dans la pastille pour une chauffe lente pour différentes épaisseurs, pour cela nous utiliserons les trois exemples de chauffés simulés pour un temps de chauffe de 80 ms.

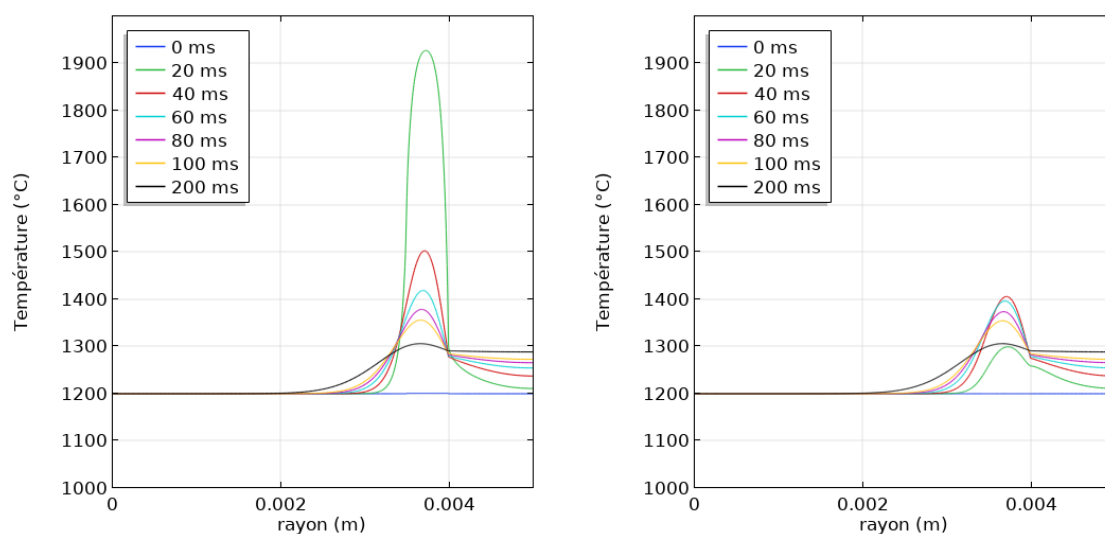


FIGURE II.17. – A gauche : graphique du profil thermique radial d’une pastille d’ UO_2 de 0,5 mm de hauteur, à différents temps pour une chauffe de 400 W de 20 ms. A droite : graphique dans les mêmes conditions, en étant à mi-hauteur de la pastille (0,250 mm)

Sur la figure II.17 à gauche, représentant la température en fonction du rayon sur une des faces exposées au laser, les conditions initiales étaient les suivantes :

- chauffe de 400 W d’une durée de 20 ms,
- pastille d’épaisseur = 0,5 mm,
- température initiale de la pastille et de la gaine = 1200°C .

Nous observons, que la température cible de 2000°C est atteinte au pic. De plus, la zone chauffée se situe comme souhaité légèrement en retrait de la surface latérale du cylindre avec un pic de température à une position radiale d’environ 3,80 mm.

Le graphique de droite est issu de la même simulation et présente la température en fonction du rayon à mi-hauteur de l’échantillon, c’est à dire, que nous suivons une ligne de coupe à $z=0,250$ mm. A 20 ms lorsque la chauffe est terminée, à mi-hauteur, la température maximale est d’environ 1300°C , c’est à dire, 100°C seulement au-dessus de la température initiale et 700°C au-dessous de la température ciblée. A 40 ms, le pic de température en surface est d’environ 1550°C et à mi-hauteur de 1450°C , le gradient entre la température de surface et température à mi-hauteur s’est réduit pour atteindre une valeur de 100°C . Cependant, même si le gradient disparaît en une vingtaine de millisecondes, il est difficile de considérer cet exemple comme respectant l’objectif d’homogénéité thermique en chauffe. Comme anticipé, l’ UO_2 ayant une conductivité thermique très faible, d’importants écarts de température sont présents dans l’épaisseur de la pastille. Ceci sera le point critique du scénario 2.

Pour une chauffe plus lente, de 80 ms (la puissance est diminuée de 700 W à 300 W) et avec le même échantillon, nous observons sur la figure II.18 les nouveaux profils thermiques obtenus. La puissance du laser a dans ce cas été réduite à 225 W

afin d'atteindre toujours 2000°C . A droite de cette figure, la température maximale à mi-hauteur est de 1600°C (400°C d'écart avec la température initiale et 300°C avec la température maximale d'une face exposée).

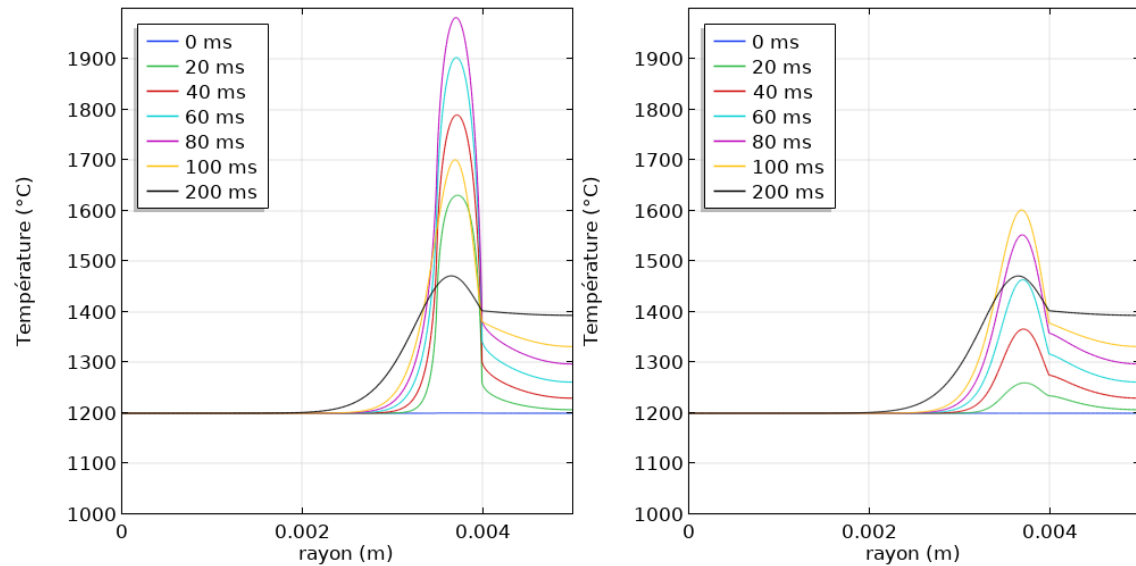


FIGURE II.18. – A gauche : graphique du profil thermique radial d'une pastille d' UO_2 de 0.5 mm de hauteur à sa surface, à différents temps pour une chauffe de 225 W de 80 ms. A droite : graphique dans les mêmes conditions, en étant mi-hauteur de la pastille (0,250 mm)

Une autre visualisation des gradients thermiques en fonction de la hauteur à différents temps est proposée avec la figure II.21. La figure représente donc une ligne de coupe (celle-ci est visualisée dans le schéma II.19), fixée au centre de l'épaisseur de l'anneau ($r=0,375$ mm), position où nous nous attendons aux maximums de température en chauffe (le pic se déplace vers l'intérieur de la pastille en phase de refroidissement, ce phénomène est visible sur les graphiques précédents II.17 et II.18). Ainsi, les éléments précédemment évoqués pour la chauffe de 20 ms sont encore plus évidents sous cet éclairage (à gauche sur le graphique), avec la courbe de la température à 20 ms en fonction de la hauteur qui a une forme de U. Sur le graphique de droite, qui représente la chauffe de 80 ms, nous pouvons observer qu'aux différents temps, l'écart ne dépasse pas les 350°C .

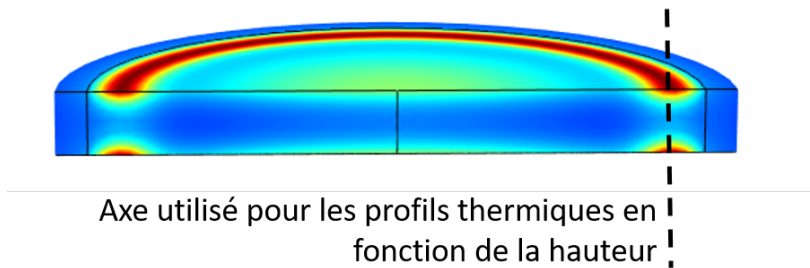


FIGURE II.19. – Définition de l'axe de coupe pour les profils de température en profondeur.

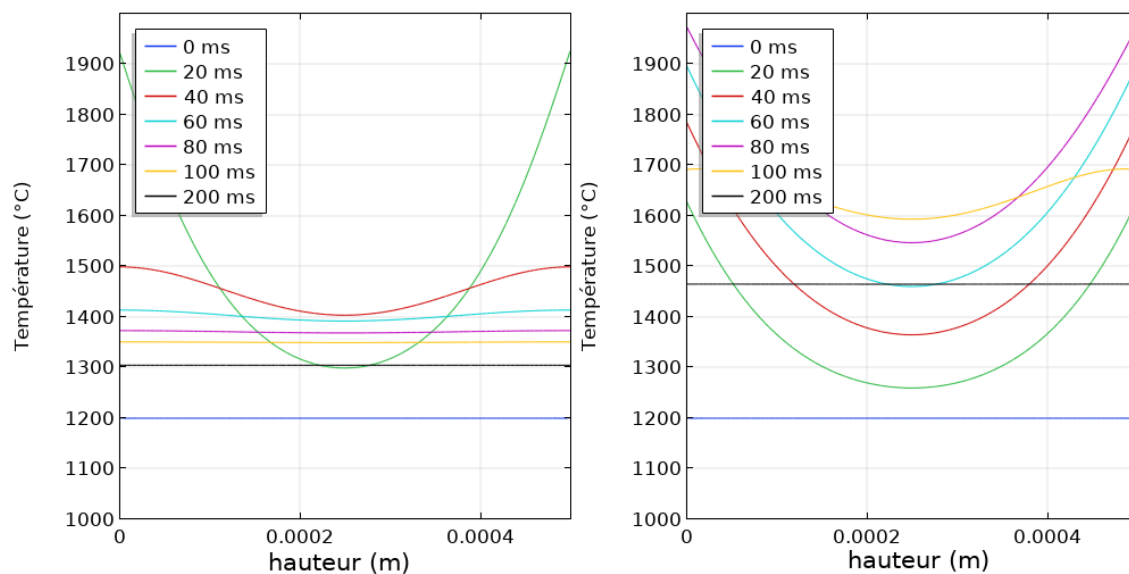


FIGURE II.20. – A gauche : profil thermique d'une pastille d' UO_2 (de 0,5 mm de hauteur) en fonction de sa hauteur, à la position radiale du pic de température à différents temps pour une chauffe de 400 W de 20 ms. A droite : graphique dans les mêmes conditions, avec une chauffe de 225 W de 80 ms.

La figure II.21 présente trois graphiques pour une comparaison des gradients thermiques dans la pastille pour différentes hauteurs (0,5 mm, 1 mm et 2 mm). Ainsi plus la hauteur est grande, plus le "délai" entre l'élévation de température en surface et au coeur est important. Au point que pour un échantillon d'une hauteur de 2 mm, 100 ms après le début de la chauffe, la température à coeur n'est toujours pas affectée. Il apparaît peu pertinent d'utiliser un échantillon avec de telles dimensions pour une chauffe d'une durée de 80 ms. Sur un échantillon de 1 mm, nous observons une légère élévation de la température dès 40 ms de chauffe, pour atteindre un écart maximal entre la surface et le coeur à 80 ms de 550°C. A 100 ms, l'écart entre les deux positions se réduit à environ 200°C.

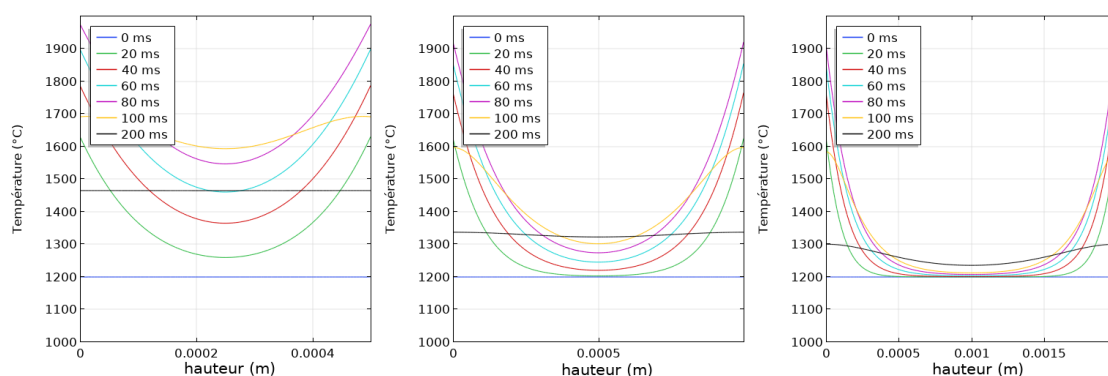


FIGURE II.21. – A gauche : profil thermique d’une pastille d’ UO_2 (de 0,5 mm de hauteur) en fonction de sa hauteur, à différents temps pour une chauffe de 225 W de 80 ms. Au centre : graphique dans les mêmes conditions, avec une hauteur de pastille de 1 mm. A droite : graphique dans les mêmes conditions, avec une hauteur de pastille de 2 mm.

Après analyse de ces différents résultats numériques, nous pouvons relever plusieurs points intéressants quant à la mise en pratique d’une chauffe par laser suivant le scénario 2 :

- D’un point de vue thermique :
 - Plus la durée du chauffage sera faible, plus l’hétérogénéité entre surface et mi-hauteur de pastille sera importante. Une durée de chauffe de moins de 20 ms peut permettre d’atteindre une température en surface de 2000°C (selon la puissance utilisée), mais la température à mi-hauteur de la pastille n’aura pas évolué et sera donc toujours à la température initiale avant chauffe.
 - L’épaisseur d’un échantillon se doit d’être au maximum de 1 mm pour maintenir une similitude dans le comportement thermique entre la surface et la mi-hauteur. C’est à dire que le cœur de la pastille chauffe en parallèle de la surface, et non avec un délai après la fin de la chauffe. Des épaisseurs plus fines, $500\ \mu\text{m}$ par exemple, voire $100\ \mu\text{m}$ sont encore plus favorables (Fig. II.22).
- Parmi les difficultés de ce scénario :
 - Le profil laser est complexe à générer. Et l’alignement peut être ardu pour obtenir un faisceau annulaire homogène et positionné correctement. Ce point sera étudié au cours de la thèse et présenté dans le chapitre IV.
 - Seul un tronçon de pastille peut-être étudié. La géométrie d’un échantillon est différente de celle d’une pastille utilisée en centrale. Ceci soulève la question de la représentativité de certains phénomènes, principalement du point de vue mécanique.
- Parmi les avantages de ce scénario :
 - Le profil thermique simulé en surface correspond au profil thermique d’un

RIA et dépend uniquement du profil du faisceau laser.

- La possibilité de travailler avec la gaine en Zircaloy.
- Les puissances utilisées sont modérées : moins de 1000 W, même pour un chauffage rapide (10 ms). Ceci allège la gestion des expériences et des contraintes liées à la puissance laser.
- Une pastille plus fine, implique une quantité de matière nucléaire plus faible.

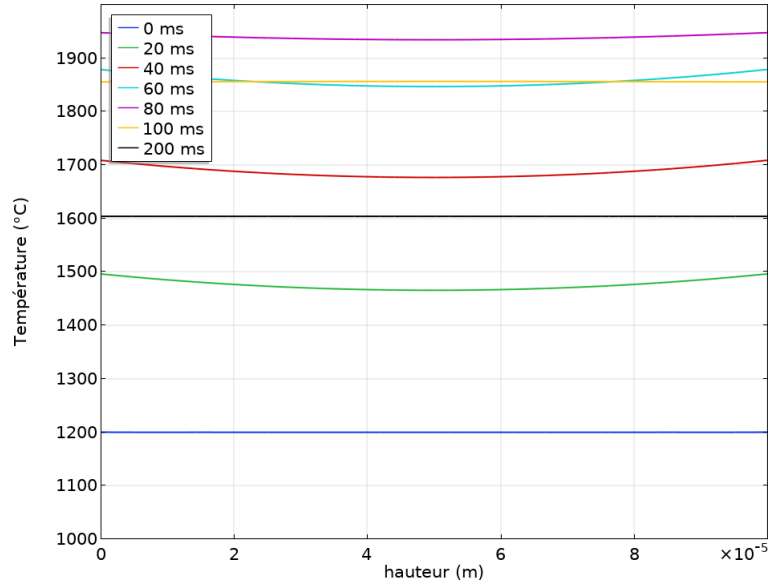


FIGURE II.22. – Graphique du profil thermique d'une pastille (de 0,1mm de hauteur) en fonction de sa hauteur, à différents temps pour une chauffe de 75 W de 80 ms

C.4. Étude de l'influence liée à un chauffage volumique

Nous avons précisé dans notre revue de la littérature concernant les propriétés de l' UO_2 l'existence de données contradictoires concernant le coefficient d'absorption. Selon les indices optiques fournis par Bober, Singer et Wagner [118, 119], la profondeur de pénétration est d'une centaine de nanomètres, et selon Ruello [120], cette valeur est d'une trentaine de microns. Nous voulons étudier l'influence sur notre modèle numérique d'une telle différence. Pour cela, nous allons réutiliser le scénario 2. En effet dans cette configuration, l'épaisseur de la pastille est très faible, typiquement $500 \mu\text{m}$, et la profondeur de pénétration du rayonnement peut avoir une influence sur les résultats.

L'équation du terme source dans cette configuration est dépendante de la hauteur (l'axe z), et est exprimée par la loi de Beer-Lambert : Pour le faisceau 1 du schéma

II.15

$$q_0(r, z, t) = \frac{2 \cdot (1 - R(T)) \cdot P(r, t)}{\pi \cdot (r_{max}^2 - r_{min}^2)} \cdot \alpha(T) \cdot \exp(-\alpha(T) \cdot z) \quad (\text{II.31})$$

et pour le faisceau 2

$$q_0(r, z, t) = \frac{2 \cdot (1 - R(T)) \cdot P(r, t)}{\pi \cdot (r_{max}^2 - r_{min}^2)} \cdot \alpha(T) \cdot \exp(-\alpha(T) \cdot (z_h - z)) \quad (\text{II.32})$$

Avec r le rayon en m, z la hauteur en m et où $z = 0$ et $z = z_h$ correspondent à la surface du matériau, t le temps en s, R le coefficient de réflexion du matériau explicité précédemment (Eq.II.28), P la puissance laser en W, r_{max} et r_{min} respectivement les rayons extérieur et intérieur de l'anneau (ici, fixés à 4 et 3,5 mm), et α le coefficient d'absorption en m^{-1} . Nous avons présenté plus tôt δ_p (Eq.II.16), la profondeur de pénétration qui est l'inverse de α .

$$\alpha = \frac{1}{\delta_p} \quad (\text{II.33})$$

Ainsi pour une profondeur de pénétration de 30 μm , α vaut :

$$\alpha = 3,3 \cdot 10^5 \text{ m}^{-1} \quad (\text{II.34})$$

Enfin $P(r, t)$ peut s'exprimer par le produit de la puissance envoyée (P_e en W, ici 225 W), $g(r)$ et $f(t)$, les distributions de puissance spatiales et temporelles normalisées :

$$P(r, t) = P_e \cdot g(r) \cdot f(t)$$

$$\text{Avec } g(r) = \begin{cases} 1 & \text{si } r \in [r_{min}, r_{max}] \\ 0 & \text{si } r \in [0, r_{min}[\cup]r_{max}, \infty[\end{cases} \quad (\text{II.35})$$

$$\text{et } f(t) = \begin{cases} 1 & \text{si } t \in [0, t_f] \\ 0 & \text{si } t \in]t_f, \infty[\end{cases}$$

Où t_f est le temps auquel la chauffe s'arrête (ici 80ms).

Afin de comparer avec le plus de précision possible, la figure Fig.II.23 présente le profil thermique d'une pastille de 0,5 mm d'épaisseur en fonction de sa hauteur à la position radiale du pic de température et ce à différents temps.

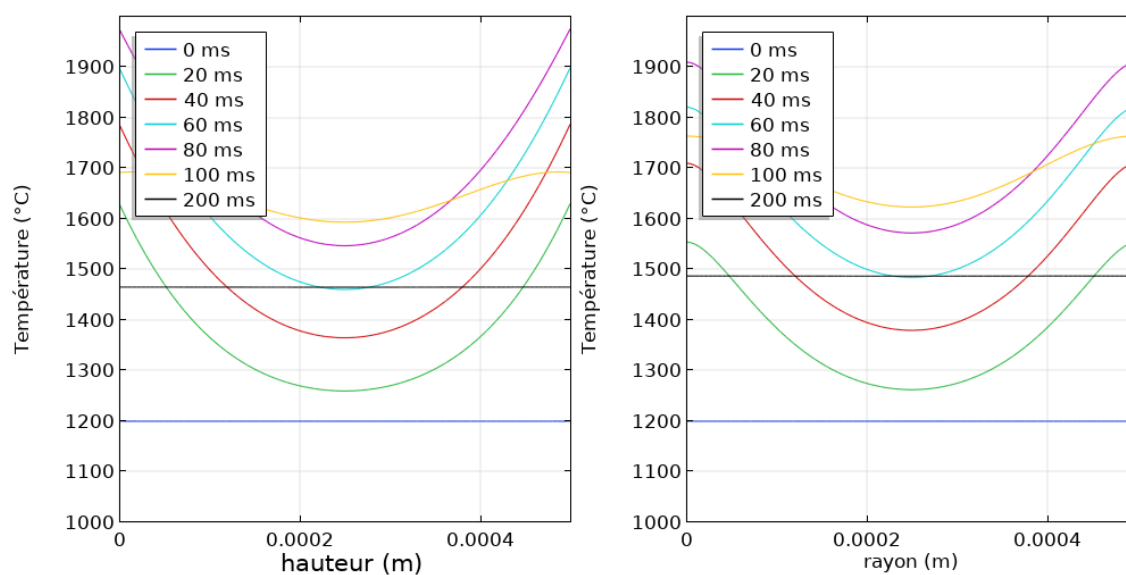


FIGURE II.23. – A gauche : graphique du profil thermique d’une pastille d’ UO_2 (de 0,5 mm de hauteur) en fonction de sa hauteur, à la position radiale du pic de température à différents temps pour une chauffe surfacique de 225 W de 80 ms. A droite : graphique dans les mêmes conditions, avec une chauffe en profondeur.

A gauche nous trouvons le graphique déjà présenté du chauffage surfacique et à droite celui du chauffage volumique. Nous observons sur la figure II.23, que le modèle numérique prévoit pour une chauffe en profondeur de l’ UO_2 d’une durée de 80ms et d’une puissance de 225 W un résultat très semblable à la chauffe surfacique. La température maximale en surface est de 1920°C et à mi-hauteur de 1630°C avec comme hypothèse de calcul une profondeur de pénétration de trente microns, contre 1980°C et 1600°C pour une profondeur de pénétration nulle. Les résultats sont conformes à l’hypothèse, un chauffage dans l’épaisseur du matériau dépose moins d’énergie en surface pour se répartir en profondeur. Néanmoins, il semble que l’influence de ce comportement du matériau face au laser ne remette pas en question la validité du scénario 2. Nous observons aussi à une dizaine de microns de profondeur, un profil plus arrondi, dû à la nouvelle répartition de la puissance. Ainsi, ce scénario réduit l’écart de température entre la surface et le cœur du matériau et adoucit la pente du profil thermique. L’influence du chauffage volumique est donc plutôt favorable à une chauffe par laser de l’ UO_2 .

Nous considérerons pour la suite de ce chapitre concernant le dimensionnement des expériences de conserver un chauffage non pénétrant, c’est-à-dire, uniquement en surface de la pastille. En effet, le second type de chauffage étant à notre avantage, il est préférable d’utiliser l’hypothèse la moins favorable pour le dimensionnement, en gardant à l’esprit les deux types de chauffe pour la confrontation des résultats expérimentaux et numériques. De plus l’influence, bien que positive du chauffage volumique est faible, 60°C pour la température maximale pour un gradient thermique

de 800°C. Il semble clair cependant que nous manquons de données précises sur les propriétés optiques de l'UO₂ à la longueur d'onde de travail. Nous reviendrons sur ce sujet dans la partie [D.1.c](#) en présentant les mesures que nous avons réalisées pour combler en partie cette lacune.

D. Mise en pratique des expériences

Nous avons déterminé que le scénario 1, n'est pas idéal pour reproduire la thermique d'un RIA, en revanche, cette configuration a d'autres applications qui sont intéressantes. Nous allons donc conserver ce scénario dans l'étape de dimensionnement du système expérimental. Ainsi en utilisant les deux scénarios précédemment décrits, nous allons déterminer les configurations lasers les plus appropriées et discuter des contraintes auxquelles les différents éléments doivent répondre pour mener à bien les expériences visées.

Tout d'abord le laser doit avoir suffisamment de puissance pour permettre d'atteindre les températures visées dans le temps imparti, et doit être mis en forme de façon spécifique pour chacun des deux scénarios.

Le porte-échantillon a pour rôle de maintenir physiquement en place l'échantillon et ce à de hautes températures d'utilisation, tout en isolant la pastille "échantillon" du reste de la chambre. Enfin, la conception de la chambre expérimentale pose des contraintes d'ordre général (mise sous vide ou sous circulation de gaz, entrée de thermocouples, accès disponible pour la visualisation, et d'autres diagnostics qui seront décrits dans la section appropriée) qui devront aller de pair avec celles imposées par les différents scénarios d'utilisation (passage de plusieurs faisceaux, dissipation de la puissance laser résiduelle et de la puissance rayonnée par l'échantillon).

D.1. Mise en pratique du scénario 1

Dans le cadre de cette étude nous partirons de l'hypothèse de l'utilisation de faisceaux gaussiens. En effet, c'est la répartition spatiale d'intensité la plus commune pour les lasers à fibre que nous envisageons d'utiliser. Pour reproduire expérimentalement les conditions du scénario avec un faisceau gaussien, nous utiliserons plusieurs faisceaux laser par simplicité, même si d'autres montages pourraient être envisagés. L'objectif est de diviser le faisceau laser gaussien initial en plusieurs faisceaux gaussiens, puis d'adapter les dimensions des faisceaux à celles de la pastille (faisceaux asymétriques de forme "ovale", encore une fois une mise en forme assez simple à mettre en place avec une lentille cylindrique par exemple) pour avoir le chauffage le plus homogène sur toute la surface de l'échantillon. A titre d'exemple, le schéma figure [II.24](#) présente une pastille exposée à 4 faisceaux, mais à cette étape de l'analyse nous devons établir le nombre de faisceaux qui serait le plus judicieux ainsi que leurs dimensions idéales. Pour présenter deux cas extrêmes, se servir d'un faisceau est simple à mettre en place mais nous aurions

une grande disparité dans la répartition de la puissance du faisceau à la surface de l'échantillon ; en revanche utiliser 32 faisceaux permettrait de mieux répartir la puissance, mais le montage expérimental serait particulièrement complexe sans mentionner que la chambre expérimentale devrait comprendre au moins 32 hublots ou alors être suffisamment grande pour pouvoir diviser, diriger et mettre en forme les faisceaux à l'intérieur de celle-ci... ce qui ce n'est évidemment pas envisageable. Ainsi trois solutions jugées raisonnables ont été étudiées : 2 faisceaux, 4 faisceaux et 8 faisceaux.

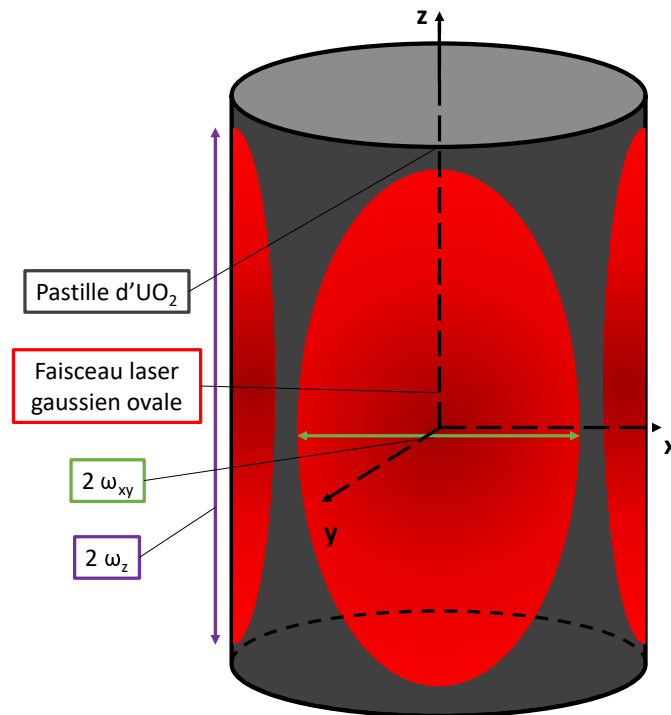


FIGURE II.24. – Schéma d'une pastille sans gaine exposée à 4 faisceaux gaussiens asymétriques

Cette première simulation utilise comme échantillon d' UO_2 une pastille dont les dimensions sont semblables à celles présentes dans les centrales nucléaires françaises, c'est-à-dire 13 mm de haut et 8 mm de diamètre. Nous réutiliserons la même maille que celle décrite dans la section précédente pour la présentation générale du modèle, c'est-à-dire une maille fine en surface (dizaine de microns) et plus large en cœur de pastille (un demi-millimètre). Pour ce modèle, nous posons l'hypothèse que l'angle d'incidence du faisceau sur la pastille, n'a pas d'influence sur les valeurs des coefficients de réflexion et d'absorption. Cette hypothèse simplificatrice pour les simulations est à utiliser avec précaution puisqu'elle est inexacte sur la base des coefficients de Fresnel. L'équipe de la Brigham Young University a mesuré par exemple une variation de la réflectance en fonction de l'angle d'incidence [124, 125]. Ces deux études sont les seules à notre connaissance à étudier l'effet de

l'angle d'incidence sur une des propriétés optiques de l'UO₂. Malheureusement ces études utilisent de l'UO₂ sous forme de couches minces, or les valeurs de réflectance obtenues pour un angle d'incidence nulle semble indiquer que le matériau a un comportement très différent sous cette forme, certainement lié aux effets interférentiels. Nous relevons donc encore la nécessité d'étudier les propriétés optiques de l'UO₂ et il sera important de discuter de ce point dans les perspectives.

Le faisceau gaussien n'étant plus homogène mais ovale, l'équation du terme source est modifiée pour répondre aux changements de la géométrie. En effet ω qui définissait le rayon à $1/e^2$ du faisceau ne sera plus le même selon l'axe de la hauteur ou de la largeur. La pastille étant plus haute que large, si on considère un échantillon dans un plan cartésien avec z , l'axe de symétrie (sens de la hauteur), et x - y les axes définissant le plan de section circulaire alors ω_z et $\omega_{x,y}$ doivent être différents pour que les faisceaux couvrent la surface de façon optimale afin que la température de l'échantillon soit la plus homogène en surface.

Ainsi, si on fixe le centre du repère cartésien (x,y,z) au cœur de la pastille, tel que visible sur la figure II.24, où en tout point de la surface $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ avec r le rayon, et où $z = 0$ est à mi-hauteur de la pastille. La nouvelle équation du terme source dans cette configuration est :

$$q_0(x, y, z, t) = \frac{(1 - R) \cdot 2 \cdot P(t)}{\pi \cdot \omega_{x,y} \cdot \omega_z \cdot N} \cdot GD_z(z) \cdot GD_{x,y}(x, y) \quad (\text{II.36})$$

Où GD_z et $GD_{x,y}$ sont les équations de la distribution gaussienne du laser en fonction respectivement de l'axe z et des axes x et y et N est le nombre de faisceaux. Avec :

$$GD_z(z) = \exp\left(\frac{-2}{\omega_z^2} \cdot z^2\right) \quad (\text{II.37})$$

et :

— Pour deux faisceaux :

$$GD_{x,y}(x, y) = \exp\left(\frac{-2}{\omega_{x,y}^2} \cdot x^2\right) \quad (\text{II.38})$$

— Pour quatre faisceaux :

$$GD_{x,y}(x, y) = EqII.38 + \exp\left(\frac{-2}{\omega_{x,y}^2} \cdot y^2\right) \quad (\text{II.39})$$

— Pour huit faisceaux :

$$GD_{x,y}(x, y) = EqII.39 + \exp\left(\frac{-2}{\omega_{x,y}^2} \cdot \left|\frac{x}{\sqrt{2}} \pm \frac{y}{\sqrt{2}}\right|^2\right) \quad (\text{II.40})$$

Une analyse paramétrique permet de définir les valeurs optimales de ω_z et $\omega_{x,y}$,

par rapport à l'homogénéité de la température de la pastille tout en limitant les pertes. En effet, si nous utilisons des valeurs trop importantes pour ω_z et $\omega_{x,y}$, la température sera homogène, mais une partie non négligeable du faisceau ne sera pas dirigée sur la pastille. Ceci a deux conséquences :

- La partie du faisceau qui n'est pas dirigée vers l'échantillon peut entraîner des risques pour la sécurité de la chambre expérimentale en la chauffant directement, ou éventuellement entraîner des retours vers le laser.
- Avoir une part trop importante de la puissance laser envoyée qui ne contribue pas à effectivement chauffer la pastille implique de devoir augmenter la puissance totale nécessaire du laser pour produire les gradients thermiques recherchés.

Sur la figure II.25, nous avons calculé pour différentes valeurs de ω_z et $\omega_{x,y}$ le ratio entre la puissance laser envoyée et la puissance reçue par la pastille. Nous avons fait varier ω_z entre 6,5 mm et 13 mm et $\omega_{x,y}$ entre 2 mm et 8 mm, les valeurs maximales (13 mm et 8 mm) correspondant aux dimensions de la pastille. Ce graphique permet de visualiser les pertes selon les paramètres choisis. Si nous choisissons $\omega_z = 13 \text{ mm}$ et $\omega_{x,y} = 8 \text{ mm}$, plus de 40% de la puissance du faisceau ne contribue pas au chauffage de l'échantillon.

Pour étudier les différents paramètres influant sur le chauffage, nous avons déterminé en fonction du nombre de faisceaux et des dimensions de ω_z et $\omega_{x,y}$, la puissance nécessaire pour atteindre 2000°C en moyenne en surface en 80 ms et l'écart entre la température moyenne en surface et la température maximale de l'échantillon. En effet, c'est à la surface que nous nous attendons à la plus grande disparité entre les températures. Ainsi, les combinaisons de paramètres trop exigeantes en puissance ou présentant des gradients thermiques trop importants seront écartées.

Pour chaque cas nous avons étudié cette combinaison de paramètres :

- Cas 1 : $\omega_z = 6.5 \text{ mm}$ et $\omega_{x,y} = 4 \text{ mm}$
- Cas 2 : $\omega_z = 10 \text{ mm}$ et $\omega_{x,y} = 6 \text{ mm}$
- Cas 3 : $\omega_z = 13 \text{ mm}$ et $\omega_{x,y} = 8 \text{ mm}$

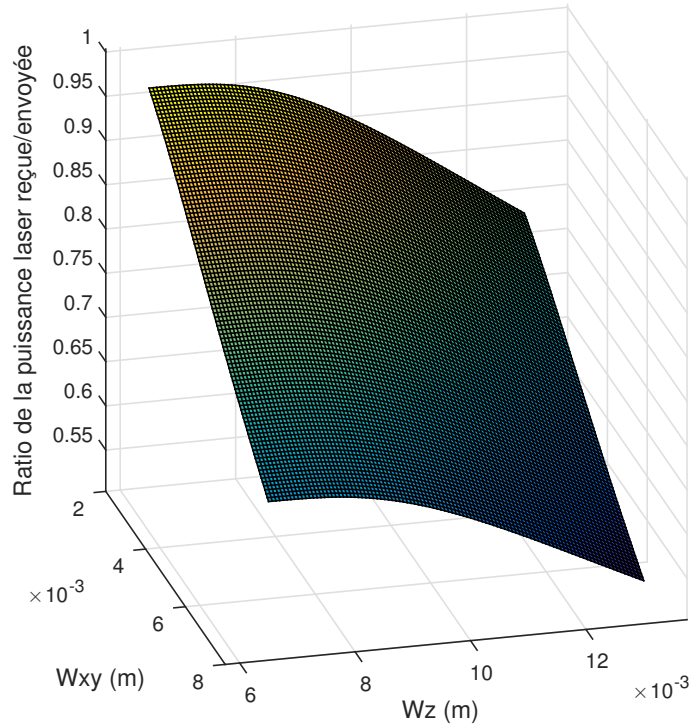


FIGURE II.25. – Graphique 3D représentant le ratio de puissance reçue par la puissance envoyée en fonction de ω_z et $\omega_{x,y}$

Nombre de faisceaux \ N° Cas	Cas 1	Cas 2	Cas 3
2	2500 W	3000 W	4000 W
4	2500 W	3000 W	4000 W
8	2500 W	3000 W	4000 W

TABLE III. – Tableau récapitulatif des puissances laser utilisées en fonction du nombre de faisceaux et du cas utilisé (ω_z et $\omega_{x,y}$)

Pour deux faisceaux :

Nous observons sur la figure II.26, les différences pour chaque cas entre la température maximale et la température moyenne de l'échantillon à sa surface. Dans le cas 3, le plus favorable pour l'homogénéité avec les tailles de waist les plus

larges, on observe une différence de près de 500°C entre les deux courbes. Nous observons que cette différence atteint 700°C pour le cas 2 et presque 1500°C pour le premier cas, avec une température maximale dépassant la température de fusion du matériau, ce dernier point le disqualifie sans plus d'analyse.

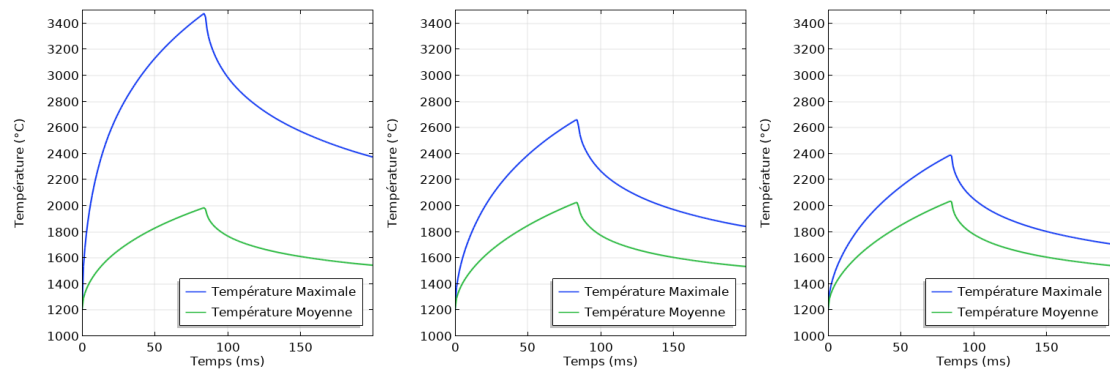


FIGURE II.26. – A gauche : graphique de la température maximale et moyenne en surface de l'échantillon dans le cas 1 après une chauffe à 2500 W. Au centre : graphique dans le cas 2 avec 3000 W. A droite : graphique dans le cas 3 avec 4000 W.

Pour quatre faisceaux :

Nous observons sur la figure II.27, que les puissances nécessaires pour atteindre une température moyenne de 2000°C sont similaires pour chaque cas avec le chauffage à 2 faisceaux. En effet, si la distribution de la puissance est différente selon le nombre de faisceaux, pour un cas défini, quelque soit le nombre de faisceaux la puissance reçue est la même. La température moyenne en surface et la puissance reçue sont donc étroitement reliées. On observe une nouvelle fois un écart important entre la température moyenne pour le cas 1 avec environ 800°C . En revanche, les cas 2 et 3, se limitent à environ 200°C de différence (environ 250°C pour le cas 2 et 175°C pour le cas 3), ce qui est très satisfaisant. Nous pouvons à ce stade considérer, qu'un chauffage avec deux faisceaux est clairement insatisfaisant par rapport à un chauffage à quatre faisceaux.

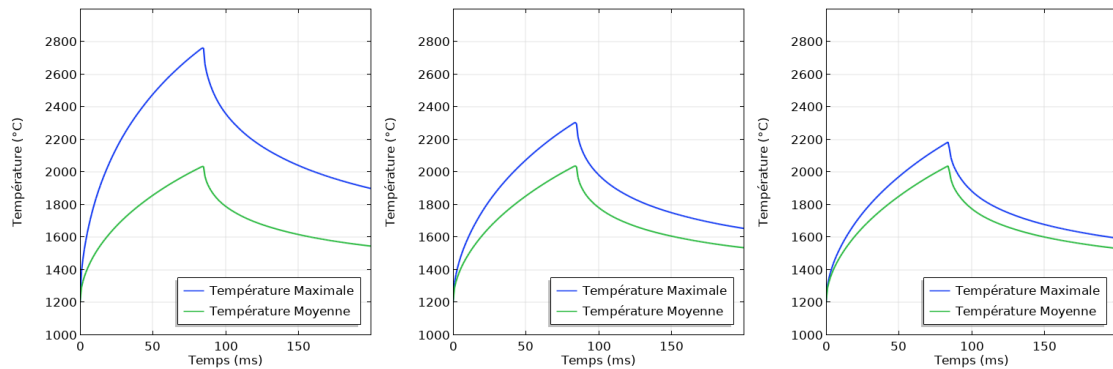


FIGURE II.27. – A gauche : graphique de la température maximale et moyenne en surface de l'échantillon dans le cas 1 après une chauffe à 2500 W. Au centre : graphique dans le cas 2 avec 3000 W. A droite : graphique dans le cas 3 avec 4000 W.

Pour huit faisceaux :

Les résultats sont reportés sur la figure II.28. Pour le cas 1, la différence de température est toujours trop grande, avec plus de 500°C d'écart. Cependant pour les cas 2 et 3, il n'y a pas de réduction sensible de l'écart de température, par rapport à quatre faisceaux. L'écart reste d'environ 200°C (225°C pour le cas 2 et 150°C pour le cas 3).

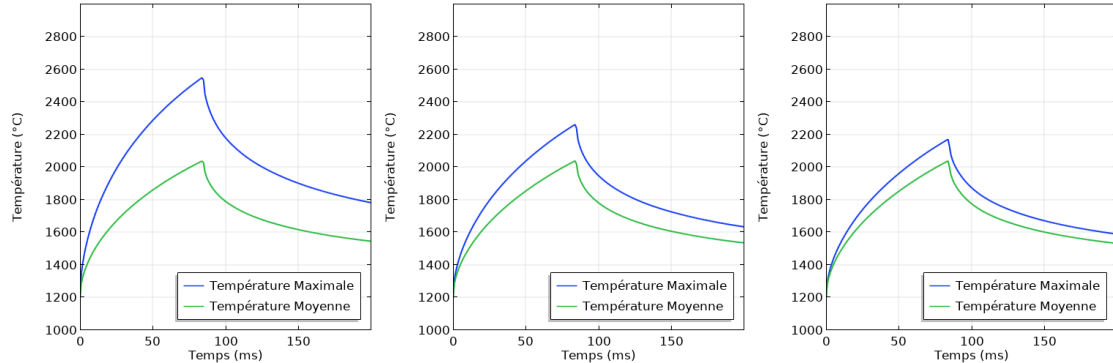


FIGURE II.28. – A gauche : graphique de la température maximale et moyenne en surface de l'échantillon dans le cas 1 après une chauffe à 2500 W. Au centre : graphique dans le cas 2 avec 3000 W. A droite : graphique dans le cas 3 avec 4000 W.

Ainsi il est dur de privilégier du point de vue de l'homogénéité thermique l'utilisation de huit faisceaux au lieu de quatre. L'intérêt (une réduction entre la température maximale et moyenne de 25°C) est trop faible pour justifier la complexification des expériences laser pour diviser, aligner et mettre en forme huit faisceaux. En revanche, l'utilisation de deux faisceaux, bien que plus simple, souffre d'un trop grand écart entre la température moyenne et maximale en surface,

celle-ci étant d'au moins 500°C. Ainsi suite à notre analyse paramétrique et en ayant précisé nos critères de choix, nous concluons que la solution de réaliser le chauffage avec quatre faisceaux est le meilleur compromis pour produire une rampe rapide et homogène en surface d'une pastille d'UO₂. Quant à la possibilité d'utiliser le cas 2 ($\omega_z = 10 \text{ mm}$ et $\omega_{x,y} = 6 \text{ mm}$) ou le cas 3 ($\omega_z = 13 \text{ mm}$ et $\omega_{x,y} = 8 \text{ mm}$), une augmentation de la puissance maximale du laser de plus de 25 % est faiblement justifiée par le gain d'homogénéité. La puissance laser idéale pour chauffer de manière homogène la pastille d'UO₂ serait de 3000 W.

D.1.a. Mise en pratique du scénario 2

A nouveau l'équation du flux de chaleur est à redéfinir. La géométrie du faisceau réel étant différente de celle utilisée dans les simulations précédentes, nous allons proposer de nouveaux paramètres pour la décrire (Fig II.29). Nous avons également considéré ici, un faisceau de type gaussien pour former l'anneau. Nous définissons ω_{an} , le rayon à $1/e^2$ du faisceau annulaire gaussien en m . Cette valeur va correspondre à l'épaisseur de l'anneau. Ensuite r_{an} , le rayon annulaire en m , est la distance séparant le centre de l'anneau et le centre de l'épaisseur de l'anneau. Sur un faisceau ainsi défini, la valeur de $r_{an} - \omega_{an}$, correspond au cercle inférieur de l'anneau et la valeur de $r_{an} + \omega_{an}$, correspond au cercle extérieur de ce-dernier.

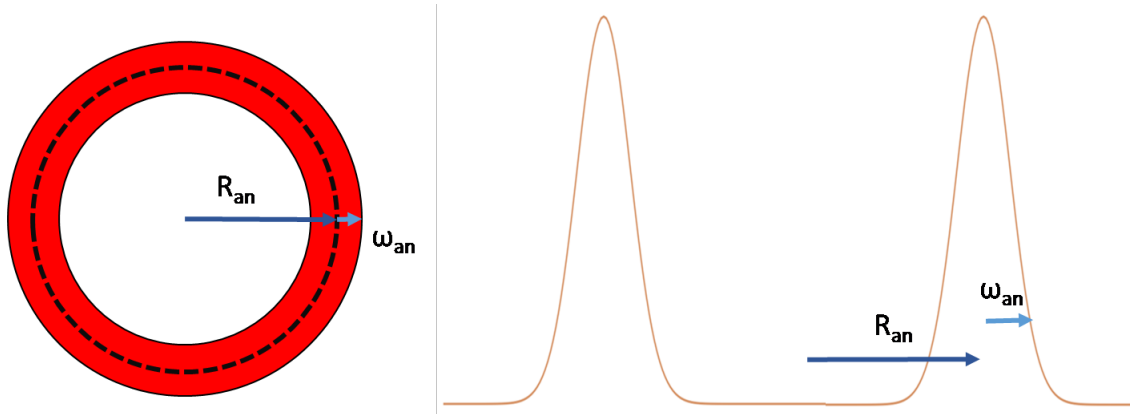


FIGURE II.29. – Graphique représentant le faisceau annulaire

La répartition de la puissance du faisceau annulaire gaussien en fonction de la position est définie par l'équation suivante (voir annexe B pour la démonstration) :

$$I(r_{an}, \omega_{an}) = I_{\max} e^{-2 \frac{(r-r_{an})^2}{\omega_{an}^2}} \quad (\text{II.41})$$

Avec I , l'intensité en $W.m^{-2}$, I_{\max} , l'intensité maximale (située à $r = r_{an}$) en $W.m^{-2}$

décrite ci-dessous et r , la distance à l'origine de l'anneau en m.

$$I_{\max} = \frac{P}{\pi \cdot \left(\frac{\omega_{an}^2}{2} \cdot e^{-\frac{2r_{an}^2}{\omega_{an}^2}} + r_{an} \cdot \frac{\omega_{an} \cdot \sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \cdot \operatorname{erfc} \left(-\frac{\sqrt{2} \cdot r_{an}}{\omega_{an}} \right) \right)} \quad (\text{II.42})$$

Avec P , la puissance du laser en W et erfc la fonction définie par :

$$\operatorname{erfc}(x) = \int_x^{\infty} e^{-t^2} dt \quad (\text{II.43})$$

En se basant sur l'expérience présentée dans le chapitre 1 (Fig I.22), nous avons défini que le pic de température se situait à 4,1 mm de rayon, avec une épaisseur de pic de 0,5 mm. Ainsi, nos premières simulations utiliseront ces valeurs pour fixer $r_{an} = 4,1 \text{ mm}$ et $\omega_{an} = 0,25 \text{ mm}$. Le modèle comprend l'échantillon, la gaine et une simplification du porte-échantillon. Ce dernier sera représenté par un disque en Zircone autour de la gaine. Nous réutilisons exactement la maille décrite dans la présentation générale, un maillage fin (dizaines de microns) dans l'ensemble de la pastille et dans la zone de contact pastille/gaine et un maillage plus épais de 100 μm en bordure de gaine et dans le porte-échantillon.

Epaisseur (mm) \ Temps de chauffe (ms)	20 ms	80 ms
0,5 mm	400 W	225 W

TABLE IV. – Tableau récapitulatif de la puissance utilisée pour les chauffés simulées de la mise en pratique du scénario 2 en fonction de la durée

Nous appliquons ces paramètres sur une pastille de 0,5 mm de hauteur, pour réaliser une chauffe de 20 ms et 80 ms (Fig.II.30). Les graphiques sont très proches de ceux présents dans la présentation du scénario 2 (Fig.II.17 et Fig.II.18). En effet la puissance nécessaire pour le chauffage de 20 ms est de 400 W dans les deux cas, et pour le chauffage de 80 ms, la puissance est de 225 W dans le cas de la présentation du scénario 2 contre 215 W dans le cas avec un faisceau annulaire gaussien. Cet écart est justifié par un profil plus piqué de la répartition de la puissance dans le cas du faisceau annulaire gaussien. Lors de la présentation générale du modèle le faisceau de 225 W était réparti de manière homogène sur la zone de chauffe.

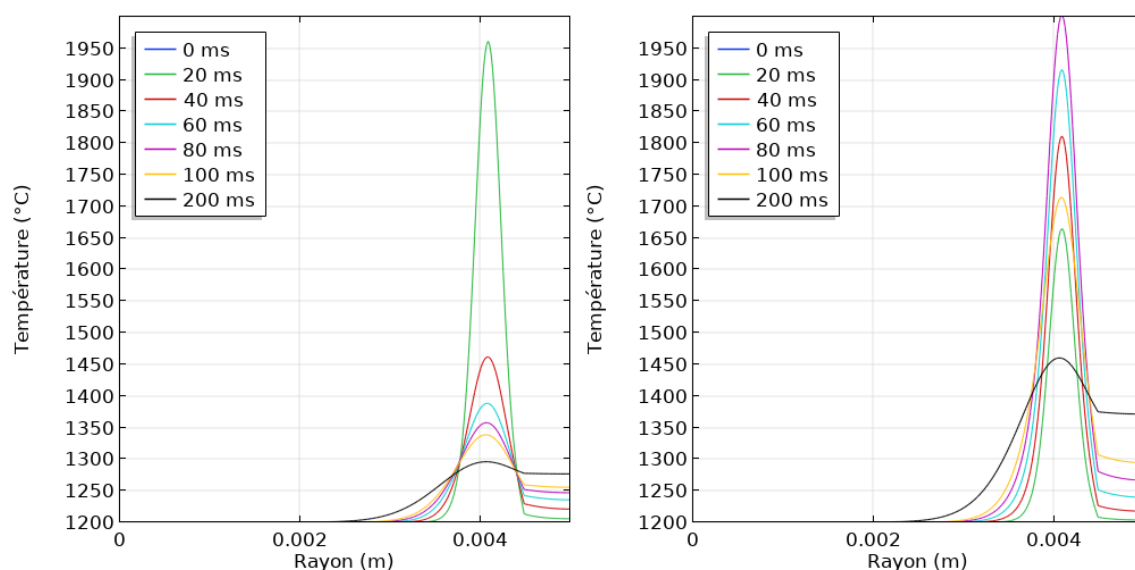


FIGURE II.30. – A gauche : profil thermique radial en surface d’une pastille d’ UO_2 de 0.5 mm de hauteur, à différents temps pour une chauffe de 700 W de 20 ms. A droite : graphique similaire pour une chauffe de 80 ms à 425W.

Le passage du cas de la présentation générale à celui de la mise en pratique avec un faisceau laser réel se réalise sans complication. Les deux profils de températures sont extrêmement similaires et les puissances nécessaires semblables que ce soit pour la chauffe de 20 ms ou de 80 ms. A première vue, rien ne semble contrevenir à la réalisation de ce scénario. Nous développerons par la suite les solutions techniques envisagées pour obtenir un faisceau laser gaussien annulaire, qui est le point clé de la mise en application du scénario.

D.1.b. Bilan

Après une étude de la mise en pratique de deux scénarios par l’utilisation d’un laser comme source de chaleur, nous avons déterminé les dimensions des faisceaux, la géométrie des échantillons et aussi les puissances requises permettant de réaliser chaque scénario. Dans le chapitre suivant nous allons dimensionner pour les deux scénarios la chambre expérimentale et les porte-échantillons. Néanmoins dans le cadre de la thèse nous avons privilégié le travail expérimental sur le scénario 2. Celui-ci étant un meilleur point de départ pour la reproduction des gradients thermiques type d’un RIA sur l’ UO_2 avec différents avantages :

- Utilisation d’une puissance laser plus raisonnable (700 W pour le scénario 2, plus de 3000 W pour le premier scénario)
- Utilisation de moins de matière nucléaire (le volume de l’échantillon utilisé est de 25 mm^3 pour le scénario 2, contre environ 650 mm^3 avec le scénario 1)

- Plus de souplesse dans le profil du dépôt de puissance, avec un contrôle de la position du pic et de l'épaisseur de l'anneau
- Possibilité de réaliser une chauffe avec la gaine en Zircaloy

E. Conclusion

Ce chapitre a tout d'abord présenté une revue des propriétés du matériau d'intérêt pour la thèse : le Dioxyde d'Uranium non irradié (UO_2) (la Zircone (ZrO_2), le Zircaloy-4, et le Saphir ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$) en annexe). Nous avons principalement utilisé les données de différents Handbook pour les propriétés thermiques et mécaniques de ces matériaux, en particulier celui réalisé par l'IAEA. Nous avons fait une présentation de la littérature disponible concernant les propriétés optiques de l' UO_2 . Sur ces dernières nous avons noté le peu de données disponibles dans la littérature, notamment dans le domaine proche infrarouge qui nous concerne [118–121]. Certaines de ces données sont par ailleurs contradictoires, ce qui indique qu'à terme nous devons disposer de nos propres moyens de caractérisation optique des échantillons pour disposer d'un modèle numérique robuste. En première approche, nous utiliserons comme indiqué un modèle d'absorption surfacique. Nous utilisons, les propriétés de ces matériaux dans notre modèle numérique, crée via COMSOL Multiphysics pour simuler l'interaction Laser/ UO_2 et plus particulièrement pour reproduire par calculs selon deux scénarios définis, les gradients spatio-temporels thermiques d'un RIA. Le premier scénario utilise une pastille entière (8 mm de diamètre et 13 mm de hauteur) sans gaine sur laquelle sont dirigés quatre faisceaux laser de forme gaussienne ovalisée. Ce scénario a l'avantage d'utiliser une pastille type d'une centrale REP, il exige en revanche beaucoup de puissance. Le profil thermique pour ce scénario présente une différence notable avec celui d'un RIA : le pic de température se fait à la surface de la partie cylindrique de la pastille et non légèrement en retrait de la surface. Pour cette raison, le scénario ne sera pas prioritairement étudié de façon expérimentale pour la reproduction de la thermique d'un RIA. Le second scénario utilise deux faisceaux gaussiens annulaires pour chauffer les faces planes d'un échantillon cylindrique. Celui-ci est constitué d'une pastille d' UO_2 découpée puis amincie, afin de garder une température homogène dans l'épaisseur. Ce scénario plus complexe à mettre en place d'un point de vue optique, nécessite moins de puissance et surtout permet de travailler avec la gaine en Zircaloy et a le potentiel de reproduire quasi-parfaitement la dynamique d'un RIA en surface. Dans le prochain chapitre, nous utiliserons ces deux scénarios, pour dimensionner et concevoir la chambre expérimentale et les porte-échantillons. Nous utiliserons aussi dans le chapitre 4 le graphite EDM-3 pour calibrer notre instrumentation et mettre à l'épreuve la robustesse de notre modèle numérique.

III. Développement de la plateforme expérimentale

Sommaire

A	Introduction	87
B	Le dispositif expérimental	88
	B.1 Les sources lasers	88
	B.2 La chambre d'expérience	93
	B.3 Les porte-échantillons	98
	B.4 Instrumentation	100
C	Méthodes et procédures expérimentales	106
	C.1 Boucle de régulation thermique	106
	C.2 Calibration des instruments	108
	C.3 Résolution des caméras thermiques	110
	C.4 Caractérisation des faisceaux	111
D	Conclusion	113

A. Introduction

Le chapitre précédent a permis de discuter de la faisabilité théorique de la reproduction des gradients thermiques d'un RIA à l'aide de techniques laser. Nous allons maintenant discuter des développements expérimentaux visant à démontrer la faisabilité pratique. L'Institut Fresnel (équipe Interaction Laser Matière) et le CEA/IRENE/DEC (Département d'Etude des Combustibles) ont démarré en 2016 le développement d'une plateforme de chauffage laser permettant d'adresser différents axes de recherche. Le système expérimental a été développé avec comme principal objectif la reproduction de conditions de RIA telles que nous les avons détaillées précédemment. La plateforme expérimentale a cependant été conçue pour répondre à un ensemble d'objectifs plus larges :

- Générer des gradients de température contrôlés dans des pastilles ou des tronçons de pastille, particulièrement dans des conditions qui ne peuvent pas être atteintes avec les moyens de traitement thermique actuels (four à induction), tels que des rampes de montée rapides, du chauffage très localisé, etc. . .
- Pouvoir effectuer une micro-vaporisation locale d'un échantillon pour effectuer un inventaire des éléments présents. Cette vaporisation peut se faire en focalisant un faisceau laser sur la surface pour porter très rapidement le matériau à très haute température tout en minimisant la zone affectée thermiquement.
- Réaliser la fusion complète d'un échantillon, pouvant aller jusqu'à une pastille, pour en réaliser l'inventaire.
- Mesurer des propriétés optiques et thermiques de l' UO_2 . La simulation numérique de l'interaction laser/ UO_2 nécessite en effet une connaissance aussi précise que possible des propriétés optiques et thermiques du matériau étudié, ainsi que leur dépendance en température.

Pour ce faire, la plateforme pilote de l'Institut Fresnel a été équipée d'un laser de puissance et d'une chambre expérimentale à atmosphère contrôlée, couplée à différents diagnostics in-situ (pyrométrie, thermographie infrarouge, imagerie visible). Elle a été mise en place dans les locaux de l'Espace Photonique du laboratoire en 2017, et a abouti à une première expérience laser en décembre 2017 sur des matériaux postiches (graphite) et une première expérience sur UO_2 en décembre 2018. Le développement de cette plateforme a bénéficié du support de différents étudiants qui ont grandement contribué à ce que nous allons décrire dans ce chapitre : A. Plaçais (ECM) pour les premiers dimensionnements, T.Mallet (ECM) pour l'étude de la chambre expérimentale, J. Fauchaux (ENSAM) pour la réalisation de la chambre et sa mise en œuvre.

Dans ce chapitre nous allons décrire en détail cette plateforme expérimentale et son fonctionnement, tout d'abord en présentant le matériel (Sec.B) : les sources lasers, la chambre d'expérience, les porte-échantillons et l'instrumentation utilisée. Puis nous détaillerons le fonctionnement de la boucle de régulation, le protocole de calibration des différents appareils et le système de caractérisation des faisceaux

(Sec.C).

B. Le dispositif expérimental

Le schéma de principe général des expériences est présenté sur la figure III.1. Le système est composé :

- d'une ou plusieurs sources laser, pouvant éventuellement être divisées en plusieurs sous-faisceaux et mis en forme avec des optiques appropriées (partie B.1)
- d'une chambre d'expérience à atmosphère contrôlée dans laquelle se trouve l'échantillon, et disposant de différents accès optiques (partie B.2)
- des porte-échantillons adaptés aux expériences (partie B.3)
- d'un ensemble d'instruments pour observer et effectuer des mesures de température (caméras, pyromètres, thermocouples) (partie B.4)
- d'un circuit de gaz pour mettre la chambre sous vide, pour permettre une circulation de gaz porteur et dans ce cas récupérer les gaz dans une capacité (partie B.2)
- des échantillons qui seront présentés dans les chapitres IV pour le graphite EDM-3 et V pour l' UO_2 .

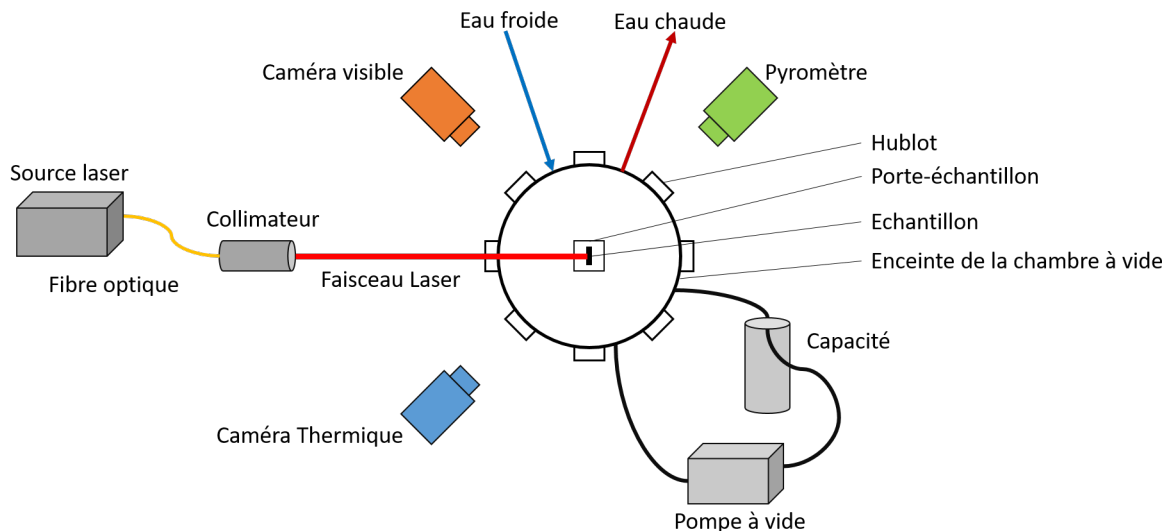


FIGURE III.1. – Schéma général du dispositif expérimental

B.1. Les sources lasers

Pour atteindre les objectifs visés la source laser doit répondre à un certain nombre de contraintes techniques : puissance disponible supérieure au kW, qualité de faisceau permettant une mise en forme aisée (génération de faisceaux annulaires),

stabilité, temps de montée inférieur à la centaine de μs . A contrario, l' UO_2 étant relativement absorbant dans le visible et l'infrarouge (voir section B.3), la longueur d'onde d'émission n'est pas une contrainte. Compte tenu de ces éléments et des lasers industriels disponibles sur le marché, les technologies laser CO_2 ($10,6 \mu\text{m}$), laser à fibre Ytterbium ($1,08 \mu\text{m}$) et laser à disque Ytterbium : YAG ($1,03 \mu\text{m}$) s'avèrent pertinentes. Prenant en compte cependant la possibilité d'implantation dans un environnement tel qu'un laboratoire de haute activité (comme le LECA-STAR, cf E.5) dans le futur, nous avons opté pour un laser à fibre Ytterbium, le laser CO_2 ne permettant pas le fibrage. L'expérience est donc équipée d'un laser principal de 1,5 kW (Figure III.2) et d'un laser secondaire de 200 W. Le premier laser, qui est le plus puissant a pour objectif de générer le choc thermique, le laser secondaire quant à lui est utilisé dans certaines configurations pour préchauffer les échantillons et atteindre les conditions initiales désirées. Les caractéristiques de ces sources sont décrites dans le tableau I).



FIGURE III.2. – Photo de la source laser à fibre Ytterbium (source de l'image : SPIlaser)

	Laser principal	Laser secondaire
Fabricant	SPI Laser	SPI Laser
Modèle	Qube 1500	RedPower
Puissance Min/Max (W)	150/1500	20/200
Longueur d'onde (nm)	1080	1060
Fonctionnement	Continu ou modulé (50 kHz max)	Continu ou modulé (20 kHz max)
Temps de montée/descente (0 à 100%)	5 μ s	10 μ s
Faisceau	Monomode transverse (faisceau gaussien), M2 < 1.1	Multimode
Diamètre en sortie de collimateur (en mm à 1/e ²)	13,5	2,5

TABLE I. – Tableau des caractéristiques des lasers indiquées par le fournisseur

Plusieurs caractéristiques de ces sources sont importantes à quantifier pour pouvoir effectuer des comparaisons simulations/expériences de façon la plus précise possible : la puissance réellement émise en fonction de la consigne demandée, le temps de réponse du laser à l'application d'une consigne donnée, et les caractéristiques spatiales du faisceau laser. Nous présentons sur la figure III.3, les courbes d'étalonnage réalisées pour quantifier la différence entre la puissance théorique envoyée à partir de la consigne logiciel, et la puissance réelle émise (mesurée à l'aide d'un calorimètre externe ou d'une sonde interne au laser). Cet étalonnage est nécessaire pour calibrer au mieux nos expériences et a été effectué régulièrement au cours des travaux. Nous constatons par exemple sur les deux relevés présentés Fig. III.3 et réalisés en fin de thèse, une différence entre la puissance théorique envoyée et la puissance réelle qui n'existait pas lors des premières expériences réalisées avec le laser. Ceci peut avoir pour origine un vieillissement de certains composants (diodes de pompage par exemple) ou des problématiques thermiques (dérive du système de refroidissement).

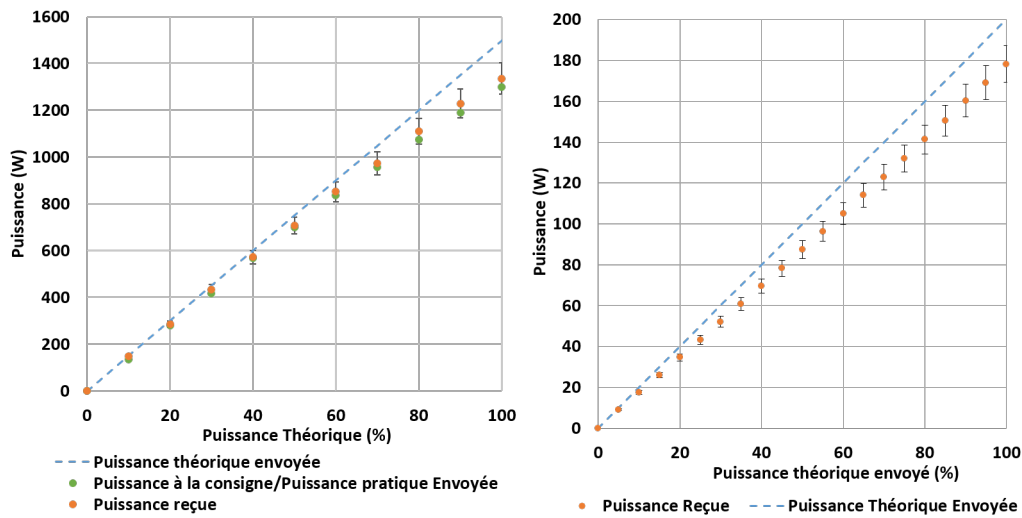


FIGURE III.3. – A gauche : puissance laser mesurée de façon externe (calorimètre) et interne (logiciel laser) en fonction de la puissance demandée ($P_{max} * X\%$), pour le laser principal. A droite : puissance laser mesurée du second laser en fonction de la puissance demandée.

Sur les graphiques III.4, nous présentons le temps de montée et de descente en puissance du laser principal pour des impulsions de 10 ms (à gauche) et 20 ms (à droite) et ce pour différentes puissances (10, 20, 30 et 40 % de la puissance maximale). Pour obtenir ces mesures nous utilisons une photodiode rapide placée en sortie du collimateur et couplée à un oscilloscope. Un temps de 2,4 ms est nécessaire pour la montée et pour la descente en puissance (d'après nos mesures, contre $5\mu s$ d'après le constructeur). Ce temps est indépendant de la puissance envoyée et de la durée de l'impulsion demandée.

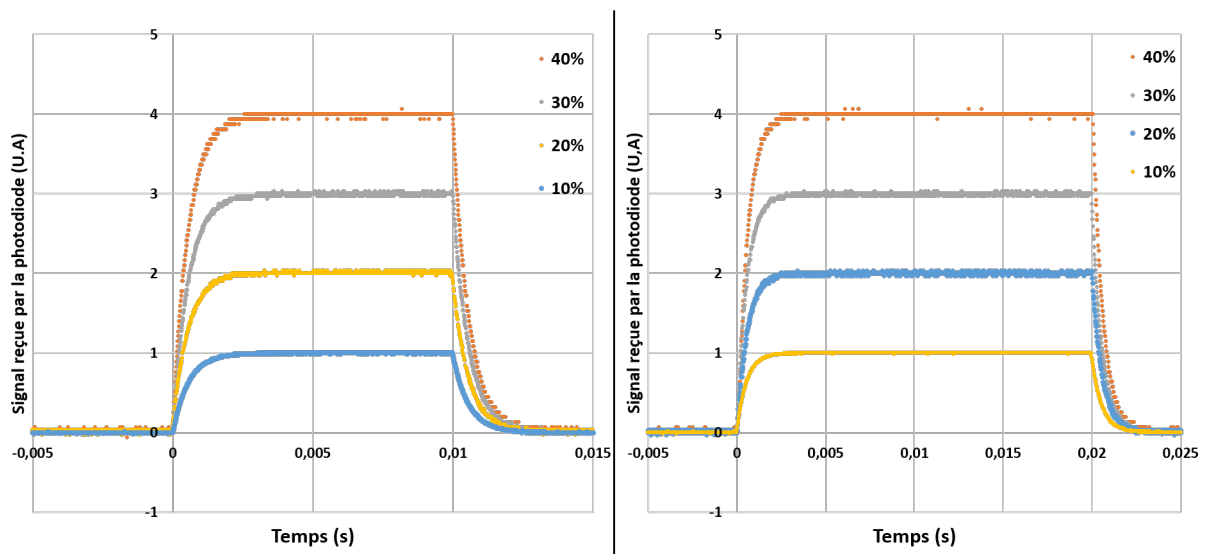


FIGURE III.4. – A gauche : signal reçu par la photodiode en fonction du temps, pour une impulsion de 10 ms et une puissance de 10, 20, 30 et 40% de la puissance maximale du laser. A droite : graphique similaire pour une durée d’impulsion de 20 ms

Enfin pour mesurer le profil du faisceau, nous utilisons des systèmes de profilométrie laser qui seront présentés dans la section C.4. Nous représentons figure III.5 une capture du profil du faisceau laser principal collimaté sur un diamètre d’environ 6 mm. Nous pouvons constater la forme Gaussienne et circulaire du faisceau.

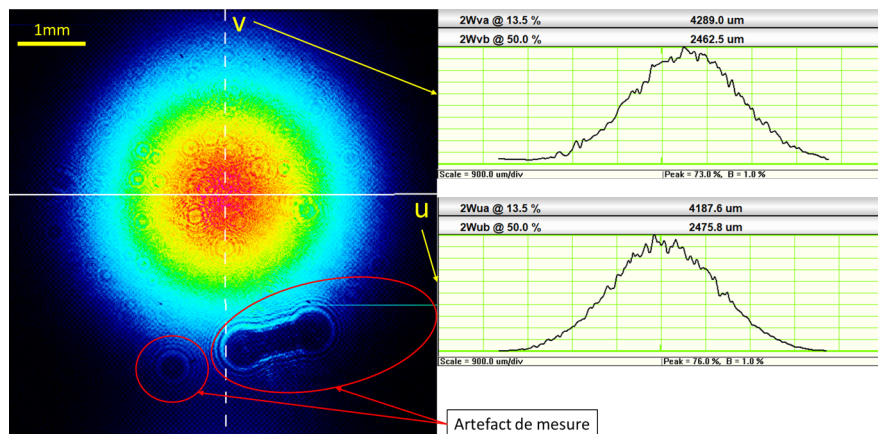


FIGURE III.5. – Image et profils horizontal et vertical du faisceau laser principal.

B.2. La chambre d'expérience

La chambre d'expérience a été conçue au début de la thèse avec un cahier des charges visant à :

- maintenir l'échantillon sous vide ou sous atmosphère contrôlée et inerte, en assurant éventuellement une circulation de gaz similaire au dispositif Moyen d'Etude pour Recuit et Analyse des Relâchements Gazeux (MERARG)¹ [126–128] (pression : 2000 mbar max, débit : 60 cc/min) pour préserver l'échantillon et récupérer les gaz occlus dans l'échantillon. Cela est important pour deux raisons, la première est d'empêcher au maximum l'oxydation de l' UO_2 et la seconde est d'avoir la possibilité d'étudier les gaz relâchés.
- permettre à un ou plusieurs faisceaux lasers de forte puissance d'interagir avec l'échantillon (hublots laser) et de pouvoir dissiper la puissance rayonnée par l'échantillon à forte température et la puissance laser non-absorbée.
- avoir des accès optiques pour l'instrumentation (pyromètres, caméras, ...).
- permettre le passage de thermocouples et autres connectiques électriques.
- être facilement démontable pour l'accès à l'échantillon et reconfigurable pour répondre à tous les besoins d'expériences exprimés précédemment.
- enfin d'avoir en tête la « nucléarisation » dans une version plus aboutie, c'est-à-dire avoir un système utilisable facilement par un téléopérateur et résistant aux conditions d'utilisations spécifiques d'un laboratoire de haute activité.

Pour dimensionner l'enceinte, nous avons envisagé la chauffe d'une pastille entière qui est la plus exigeante d'un point de vue expérimental : puissance laser et flux radiatif issu de la pastille le plus important à dissiper. Ainsi pour dimensionner l'enceinte, nous allons nous placer dans le cas d'une pastille rayonnant à 2000°C pendant des temps longs (plus de 300 secondes). Nous devons nous assurer de maintenir les parois de la chambre à des températures proches de la température ambiante sur cette durée, notamment pour préserver l'intégrité des hublots et des joints. Un acier inoxydable (304L) a été sélectionné comme matériau constitutif, celui-ci offrant une très bonne tenue sous vide, une résistance à la corrosion, et une température d'utilisation maximale de 500°C (en cas par exemple de réflexion incontrôlée du laser sur cette surface).

La géométrie de la chambre doit permettre d'installer le porte-échantillon, ou un capteur dans la chambre (pour caractériser le faisceau), permettre l'accès à quatre faisceaux gaussiens et des diagnostics à distance. La puissance passant par une optique pouvant dépasser les 1000 W, il a fallu utiliser des optiques de grande dimension afin d'éviter d'avoir une densité de flux trop importante (risque d'échauffement et d'endommagement). Des optiques de 1,5 pouces (environ 3,81 cm) montées sur des brides KF40 ont été choisies pour répondre à cette exigence. Un support de hublot spécifique permet un démontage et un remplacement rapide

1. Dispositif actuellement en opération au LECA-STAR pour l'étude du relâchement des produits de fission en fonction de la température sur combustibles irradiés

des optiques (figure III.6).



FIGURE III.6. – Photo d'un hublot KF40 démontable (source de l'image : Neyco)

Un profil de chambre cylindrique nous est apparu comme la configuration idéale pour avoir les accès optiques pour les faisceaux ou les capteurs tout autour de l'échantillon. Pour dimensionner le rayon du cylindre, nous avons cherché à établir à l'aide de calculs numériques l'échauffement provoqué sur l'enceinte par une pastille d' UO_2 portée à 2000°C pendant 5 minutes au centre de la chambre. Nous nous sommes ici particulièrement intéressés aux hublots qui sont d'une part très sensibles aux gradients thermiques, et d'autre part les composants avec la température limite d'utilisation la plus basse, en particulier les joints toriques (200°C maximum). Un exemple de calcul est présenté sur la figure III.7 sur une première ébauche de la chambre expérimentale, pour une puissance rayonnée de 1 kW pendant une minute. L'ensemble des explications, hypothèses et calculs ont fait le sujet d'un stage et sont présentés dans le rapport correspondant [129]. Les conclusions de cette étude ont permis de converger vers un rayon de chambre d'environ 15 cm.

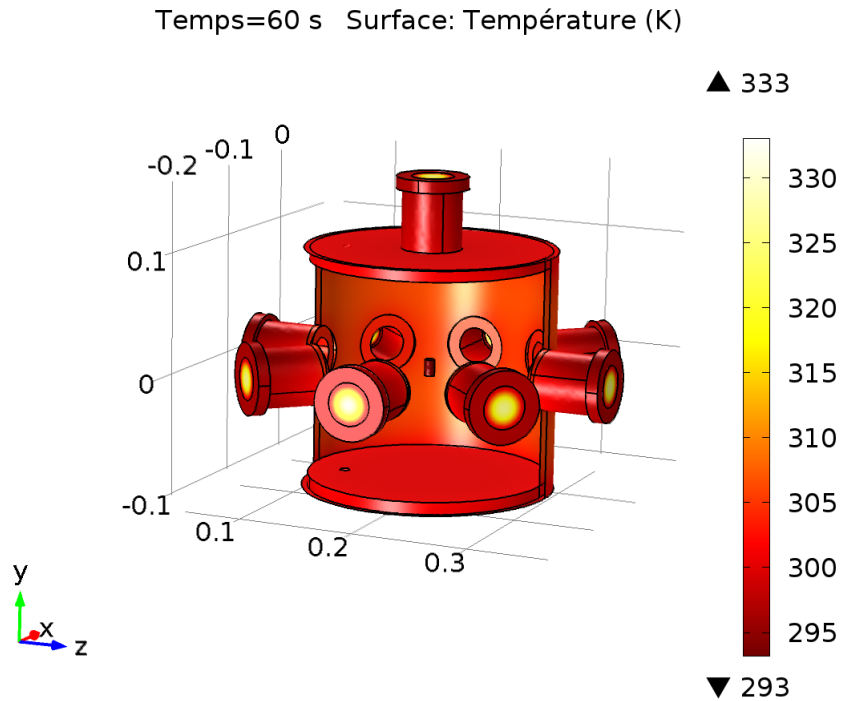


FIGURE III.7. – Température (en K) en surface de la chambre après 60 s pour 1 kW de puissance rayonnée par l'échantillon (visible au centre chambre)

Pour garantir le refroidissement des parois et des hublots, notamment en cas de chauffe laser non maîtrisée, nous avons prévu sur cette chambre une double peau où circule de l'eau tempérée (débit 5 l/min minimum) pour les parois et des serpentins de circulation intégrés dans le couvercle. La conception de cette chambre laser est présentée Figure III.8 ainsi que la chambre à sa réception à l'Institut Fresnel, Figure III.9, après des tests d'étanchéité effectués au CEA.

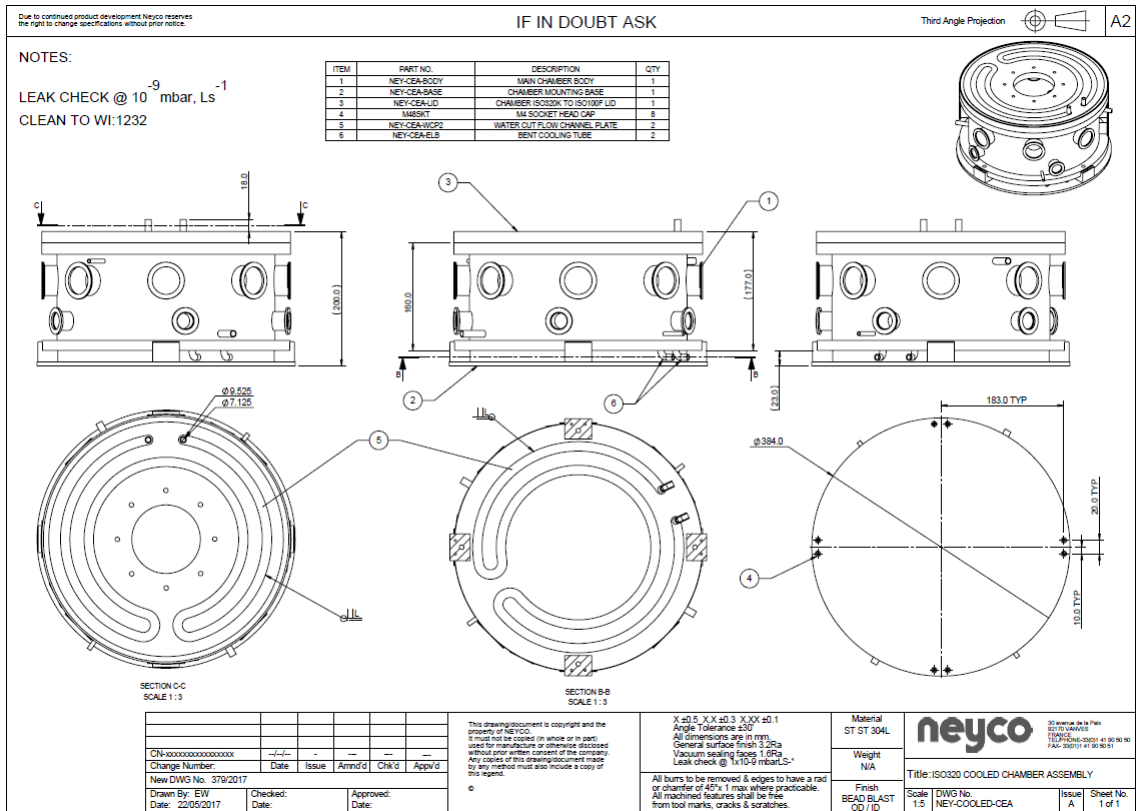


FIGURE III.8. – Dessin technique de la chambre expérimentale

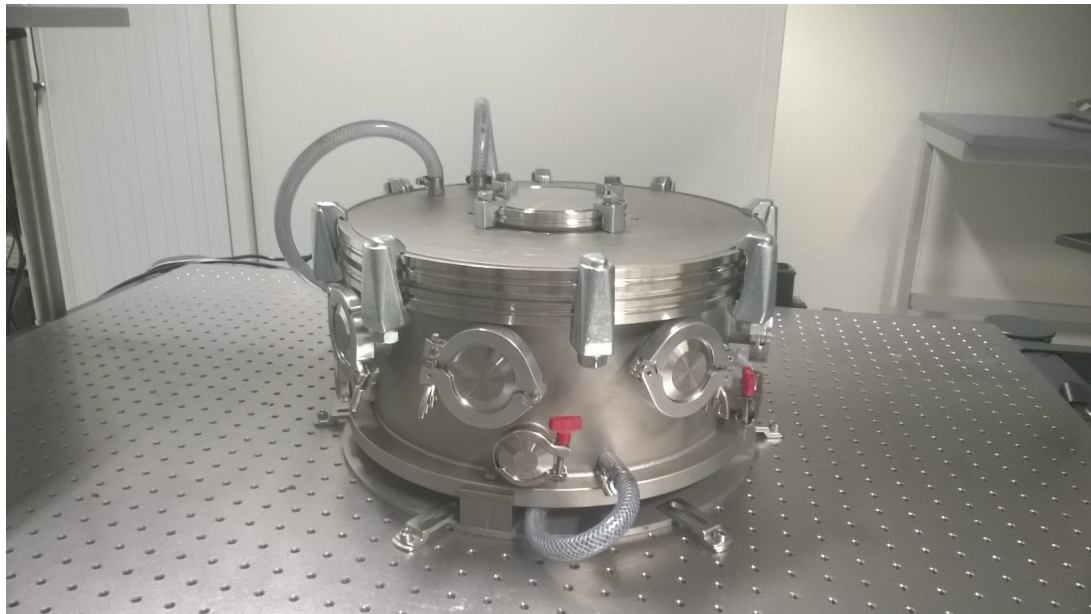


FIGURE III.9. – Photo de la chambre d'expérience

La chambre a été associée à un circuit de vide permettant de descendre à 10^{-3} mbar sous pompe sèche pour préserver les optiques d'éventuelles remontées d'huile et à un circuit de gaz schématisé sur la figure III.10. Le circuit de gaz permet de préserver l'échantillon de l'oxydation grâce à la circulation d'un gaz vecteur (Argon, Azote) et de capter, le cas échéant, les gaz occlus dans l'échantillon testé dans une capacité en se basant sur le même système que MERARG. Le montage optique sera détaillé ultérieurement (section D.2.b)

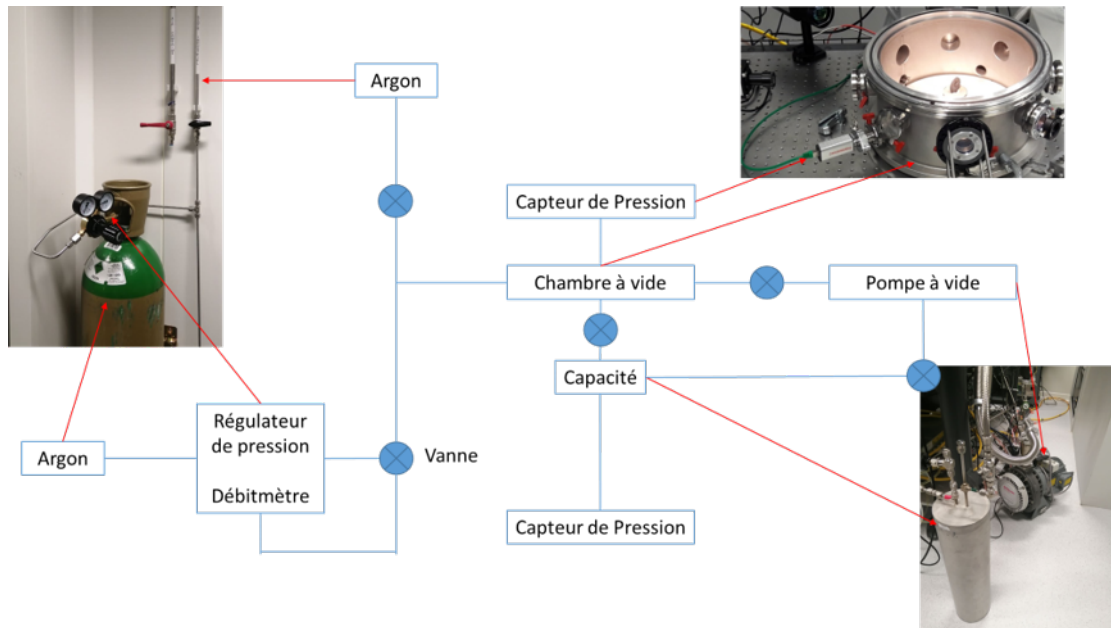


FIGURE III.10. – Schéma du circuit de gaz

Sur la figure III.11 correspondant à l'arrangement d'une expérience "RIA", on retrouve la chambre sur la table expérimentale, avec l'ensemble des hublots, la circulation d'eau, l'instrumentation et le montage optique.

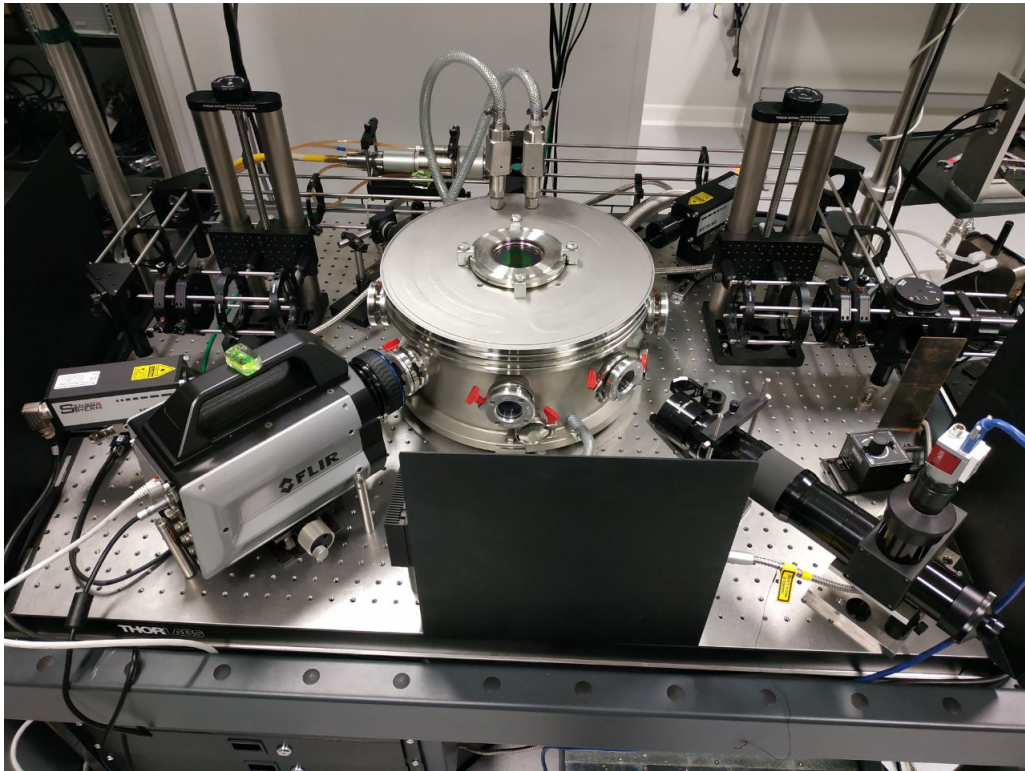


FIGURE III.11. – Photo de la table équipée et instrumentée pour une expérience dite "RIA"

B.3. Les porte-échantillons

Des portes échantillons spécifiques ont été conçus pour répondre aux besoins des deux scénarios de chauffage (pastille pleine ou disques). Les configurations étant très différentes, un type de porte échantillon par expérience a été réalisé. Ces porte-échantillons ont été conçus pour ne pas obstruer le passage du faisceau laser et des instruments de mesure, et résister à des hautes températures. Nous présentons ci-dessous les conceptions et réalisations de porte-échantillons en céramique, sur la base de dimensionnement thermique effectués sous COMSOL.

B.3.a. Conception pour la chauffe d'une pastille pleine

Ce premier porte-échantillon est relativement simple (Figure III.12), il est constitué d'une tige creuse en alumine permettant le passage d'un thermocouple et d'un « chapeau » en zircone supportant la pastille. Des encoches permettent un positionnement précis de la pastille, qui se trouve également dégagée entièrement pour l'attaque des 4 faisceaux laser, tel que nous l'avons envisagé dans le scénario 1. Le système d'encoche limite aussi la surface de contact entre l'échantillon et son support, afin de réduire les échanges thermiques au minimum.

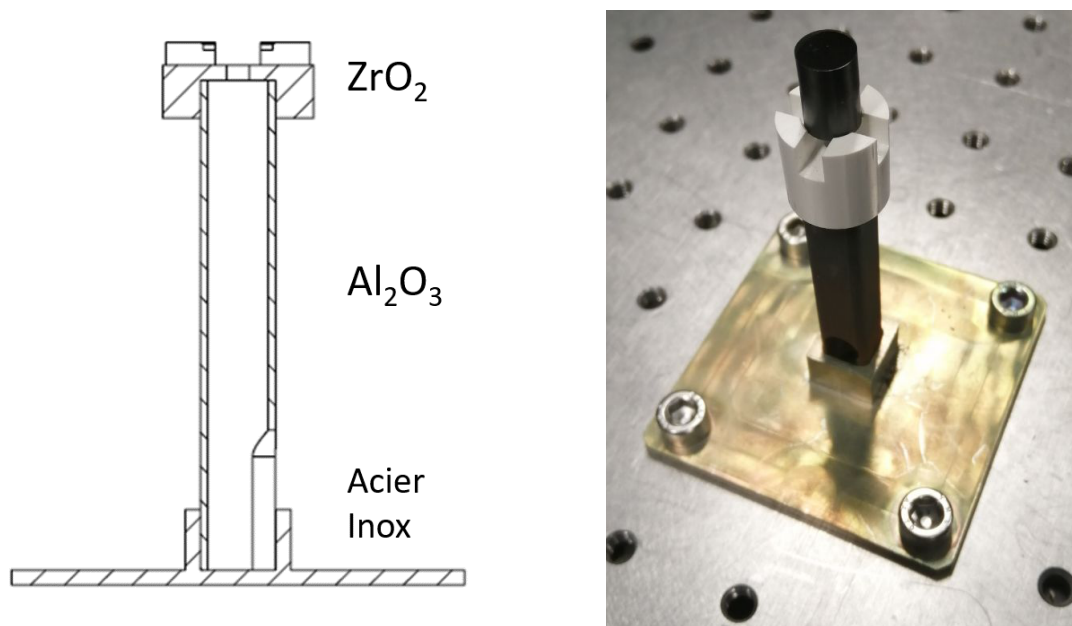


FIGURE III.12. – A gauche : Schéma du porte-échantillon. A droite : Photo du porte-échantillon avec une pastille d'UO₂

B.3.b. Conception pour une chauffe annulaire

Le porte échantillon destiné à la chauffe annulaire est plus complexe (figure III.13). Il doit permettre de maintenir l'intégrité de l'échantillon en cas de fragmentation, tout en permettant l'accès des faisceaux laser sur les deux faces de l'échantillon. Pour ce faire nous utilisons 2 fenêtres en saphir, matériau possédant à la fois d'excellentes propriétés optiques, mécaniques et thermiques, pour maintenir l'échantillon à la verticale en conservant éventuellement les fragments en place en cas de perte de l'intégrité, tout en permettant simultanément un accès optique depuis les deux côtés (figure III.14). Compte tenu de la gamme de transparence du saphir (les propriétés optiques du saphir sont données à l'annexe A), des mesures optiques dans la bande du visible jusqu'à l'infrarouge moyen (5 μm) sont possibles. Un système de cales de différentes épaisseurs et un corps en zircone permettent de positionner de façon simple et autocentrée des échantillons de différentes épaisseurs.

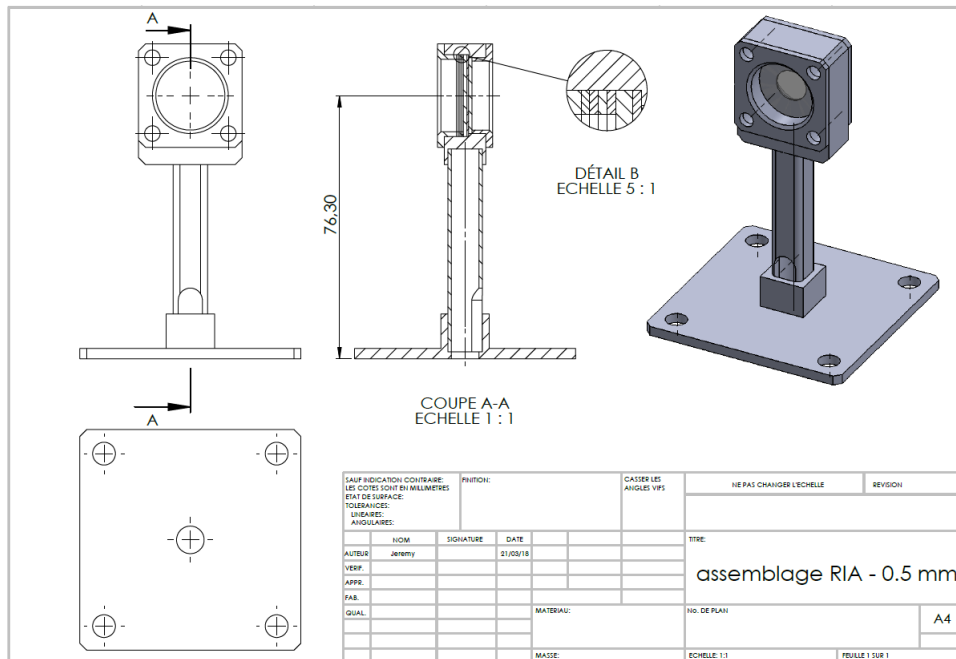


FIGURE III.13. – Dessin technique du porte-échantillon pour une chauffe annulaire

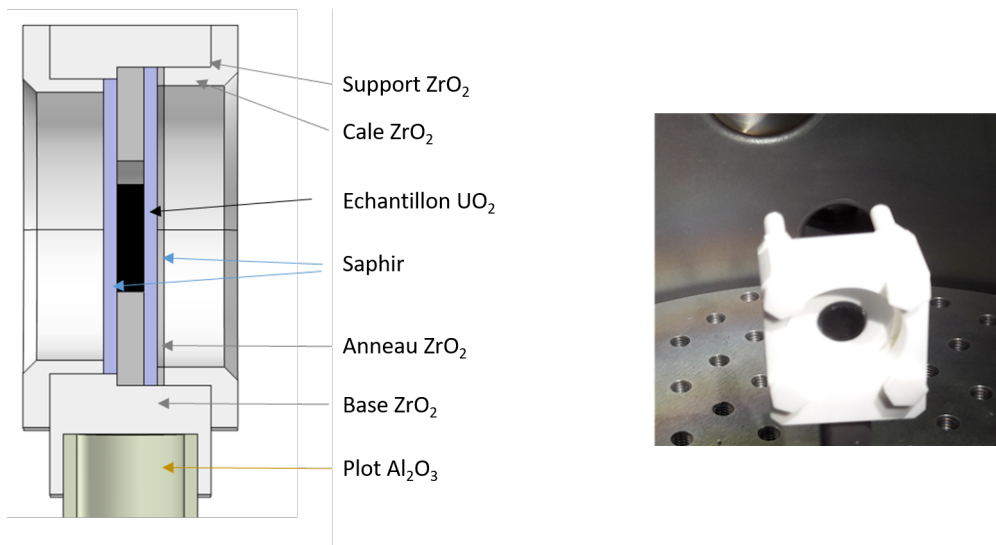


FIGURE III.14. – A gauche : Schéma descriptif de l'assemblage du porte-échantillon pour une chauffe annulaire. A droite : Photo du porte-échantillon avec un échantillon d' UO_2

B.4. Instrumentation

L'instrumentation est un élément essentiel de nos expériences. Elle a principalement pour objet de mesurer la température (mesure locale ou cartographie

de température) pour contrôler et réguler la température effective appliquée à l'échantillon. Pour cela nous disposons de trois grandes classes de capteurs : les thermocouples pour une mesure locale au contact, les pyromètres pour une mesure locale à distance et les caméras infrarouges pour effectuer de l'imagerie thermique.

B.4.a. Thermocouples

Les thermocouples peuvent être insérés dans des échantillons, dans des carottages, et maintenus en place à l'aide de colles thermiques haute température pour assurer à la fois le maintien et le contact thermique. Nous présenterons dans le chapitre suivant, un échantillon en graphite équipé de telle façon. Il existe différents types de thermocouples, chacun ayant une gamme de température d'utilisation préférentielle [130]. Nous avons utilisé 2 types de thermocouple : les types K pour les mesures à basse température (de 0 à 1200°C), et les types C pour les hautes températures (de 400 à 2300°C). Ce dernier type est un thermocouple à base de tungstène et de rhénium. Plus fragile et facilement oxydable, que les thermocouples plus courants de type K. Il a cependant une température maximale d'utilisation plus élevée. Il sera utilisé sous vide pour répondre au risque d'oxydation. Tous nos thermocouples proviennent de la société Omega et sont de type thermocouples à fil.

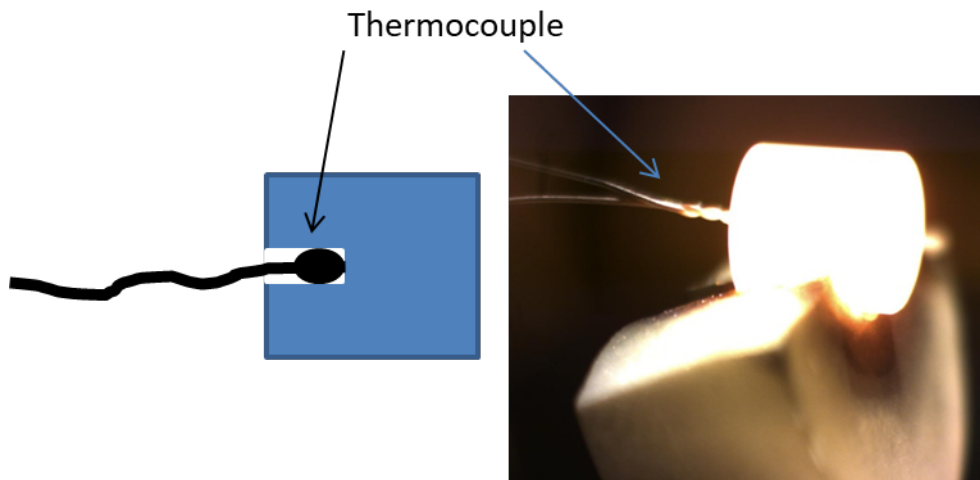


FIGURE III.15. – Exemple d'une chauffe laser d'un échantillon instrumenté par un thermocouple dans un carottage face arrière. Le laser vient du côté opposé au carottage.

B.4.b. Pyromètres

Plusieurs pyromètres développés par SensorTherm ont été acquis pour ces travaux de thèse. A l'instar des thermocouples, ils sont de différents types pour couvrir au mieux les mesures sur une large gamme de température. Dans notre cas nous avons une étendue de mesure comprise entre 50 et 3650°C. Nous disposons de deux

pyromètres monochromatiques à $1,27 \mu m$ (pyromètre à bande de mesure étroite) et dans la bande spectrale 2-2,6 μm (pyromètre à large bande). Ces pyromètres sont équipés d'une optique de focalisation permettant de réaliser une mesure sur zone restreinte ($< 1 mm^2$) à environ 30 cm de distance. Pour utiliser un pyromètre monochromatique, il est indispensable de connaître l'émissivité de l'échantillon et son évolution avec la température et ce à la longueur d'onde ou de la bande spectrale de mesure du pyromètre. Nous disposons aussi de deux pyromètres bichromatiques offrant une mesure de température pour deux longueurs d'onde, ou bandes spectrales, mais aussi une mesure de température basée sur le rapport d'intensité entre les deux canaux. Cela permet de s'affranchir de certains inconvénients comme la variation de l'émissivité à une longueur d'onde : si les deux bandes sont suffisamment proches, le rapport reste relativement constant. Cette technique est très utile en pratique pour les mesures sur UO_2 où nous avons déjà mentionné notre manque d'information concernant les propriétés optiques de ce matériau en fonction de la température. En revanche cette technique est extrêmement sensible aux variations de rapport d'émissivité. De plus amples informations sont fournies dans la section B.4.d.

Les caractéristiques des pyromètres sont présentées dans le tableau II et la figure III.16 illustre un modèle de pyromètre utilisé avec son support réglable pour la visée de l'échantillon. Pour utiliser dans les meilleures conditions la pyrométrie, nous utilisons des hublots en UVFS (Ultra-Violet Fused Silica), traités anti-reflet de 1050 à 1700 nm ($< 0,5 \%$ réflectivité sur cette bande spectrale).

Modèle	Gamme de température (°C)	Mode	Canal 1 (μm)	Canal 2 (μm)	Temps de réponse	Zone de mesure (mm)	Incertitude (relative + absolue)
H322	550-1400	Bichromatique	1,65-1,8	1,45-1,65	80 μs	0,8	0,5% °C + 1°C
H322	1300-3000	Bichromatique	1,64	1,4	80 μs	0,8	0,5% °C + 1°C
M313	600-3650	Monochromatique	1,27	X	1 ms	0,3	<2500°C : 0,25% °C + 1°C >2500°C : 0,5% °C + 1°C
M323	50-800	Monochromatique	2-2,6	X	1 ms	0,6	0,4% °C + 1°C

TABLE II. – Tableau des caractéristiques des pyromètres utilisés et incertitudes données par le fabricant.



FIGURE III.16. – Photo d'un pyromètre sur un support à 2 axes réglables (XZ)

B.4.c. Caméras Thermiques

Au cours de la thèse nous avons utilisé différentes caméras thermiques. Les deux principales correspondent au modèle FLIR A655sc et au modèle FLIR X8500sc. Nous avons pu utiliser ce second modèle plus performant grâce à un prêt du CEA Saclay. Nous avons consigné dans le tableau III les caractéristiques majeures de ces appareils. La caméra FLIR A655sc a été utilisée avec un hublot en germanium (Ge) et la caméra FLIR X8500sc avec un hublot en séléniure de zinc (ZnSe). Nous reviendrons sur les caractéristiques optiques de ces 2 caméras (champ de vision, résolution dans le plan objet) dans la partie C.3.



FIGURE III.17. – A gauche : Photo du modèle A655sc. A droite : Photo du modèle x8500sc

Modèle	A655sc	x8500sc-MWIR
Gamme de température (°C)	0-2000	0-3000
Fréquence Full Frame	50 Hz	180 Hz
Fréquence Maximale (mode fenêtrage)	200 Hz	3000 Hz
Définition	640*480	1280*1024
Taille des pixels	17 µm	12 µm
Plage spectrale de fonctionnement	7,5-14 µm	3,0-5,0 µm
Type de détecteur	Microbolomètre non refroidi	Antimoniure d'indium (InSb)
Incertitude	2°C ou 2% °C	1°C ou 1% °C

TABLE III. – Tableau des caractéristiques des deux caméras utilisées

B.4.d. Description du fonctionnement des mesures thermiques à distance

Les pyromètres et caméras infrarouges utilisent le flux thermique rayonné par un matériau pour déterminer sa température en surface. La loi de Planck (Eq III.1) relie la température à la luminance spectrale. Pour un corps noir ($\varepsilon_{CN} = 1$), nous avons :

$$L^0(\lambda, T_{CN}) = \frac{C_1 \cdot \lambda^{-5}}{e^{\frac{C_2}{\lambda \cdot T_{CN}}} - 1} \quad (\text{III.1})$$

Avec L , la luminance émise à la longueur d'onde en $W.m^{-2}.sr^{-1}$, T la température en K, $C_1 = 2hc_0^2 = 1,19108 \cdot 10^{-16} W.m^{-2}.sr^{-1}$ et $C_2 = \frac{hc_0}{k_b} = 1,4389362 \cdot 10^{-2} m.K$.

B.4.d.1. Pyrométrie monochromatique

Un pyromètre délivre un signal fonction de la luminance reçue. La conversion entre la tension de sortie (V) et la température (T) est réalisée à l'aide d'un corps noir d'étalonnage :

$$V(T_{CN}, \lambda, \mathcal{E}_{CN}) = V(T_{CN}, \lambda, 1) = \alpha \cdot L^0(\lambda, T_{CN}) \quad (\text{III.2})$$

avec α le coefficient d'étalonnage permettant de relier la luminance à la tension de sortie.

Si le corps visé par le pyromètre n'est pas un corps noir (CN), alors il faudra prendre en compte l'émissivité (ε) du matériau à la longueur d'onde du pyromètre pour déterminer la température vraie (T_v) du corps mesuré. Un paramètre correcteur τ , peut aussi être ajouté pour prendre en compte la transmission du milieu séparant le dispositif de mesure au corps mesuré. La luminance d'un corps réel à une

température (T_v), avec son émissivité (ε) et une transmission (τ) équivaut à la luminance théorique d'un corps noir d'une émissivité de 1 à une température (T_{CN}) tel que définie par Planck :

$$\tau \cdot \varepsilon \cdot L^0(\lambda, T_v) = L^0(\lambda, T_{CN}) \quad (\text{III.3})$$

On peut avec les paramètres présentés précédemment déterminer T_v en fonction de T_{CN} :

$$\frac{1}{T_v} = \frac{1}{T} + \frac{\lambda}{C_2} \ln \varepsilon_\lambda \quad (\text{III.4})$$

L'incertitude est obtenue en différenciant l'équation III.4 :

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{\lambda}{C_2} T_0 \frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon} \quad (\text{III.5})$$

Ainsi pour une longueur d'onde de 1,5 μm (ordre de grandeur de nos pyromètres monochromatiques), pour une température de 2000°C et une incertitude sur l'émissivité de 6% (si on se base sur l'incertitude de $\pm 0,05$ pour une valeur de 0,85 telle que donnée par l'IAEA [113]), l'incertitude sur la température est d'environ de 1,5%, soit un peu moins de 15°C.

B.4.d.2. Pyrométrie bichromatique

Pour un pyromètre bichromatique, nous mesurons le flux thermique du matériau à la longueur d'onde 1 (λ_1) et à la longueur d'onde 2 (λ_2). Par le rapport des signaux reçus des deux voies du pyromètre, nous définissons la température de couleur (T_C) :

$$\frac{\varepsilon_1 L^0(T_v, \lambda_1)}{\varepsilon_2 L^0(T_v, \lambda_2)} = \frac{L^0(T_C, \lambda_1)}{L^0(T_C, \lambda_2)} \quad (\text{III.6})$$

Là où un pyromètre monochromatique impose de connaître les coefficients de transmission et l'émissivité à la longueur d'onde du matériaux, un pyromètre bichromatique a uniquement besoin du rapport d'émissivité ($\varepsilon_1/\varepsilon_2$). Pour un matériau où les émissivités aux deux longueurs d'onde varient de manière similaire, le rapport d'émissivité n'évolue pas et devient une constante (k_ε).

k_ε est déterminable en phase de calibration, à température ambiante ou faible (en fonction des gammes de températures mesurables par les capteurs) et permet d'avoir une équation reliant le rapport des deux mesures de flux à la température comme seule variable. Une grande part des calibrations de la thèse concerne l'étude de rapport d'émissivité en fonction de la température ($k_\varepsilon(T)$)

La température vraie du matériau est obtenue par l'équation III.7 :

$$\frac{1}{T_v} = \frac{1}{T_{2C}} + \frac{\ln(k_\varepsilon(T))}{C_2 \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right)} \quad (\text{III.7})$$

L'équation de l'erreur sur la température mesurée pour un pyromètre bichromatique est :

$$\frac{\Delta T}{T} = \frac{T}{C_2} \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot \left(\frac{\Delta k_\varepsilon}{k_\varepsilon} \right) \quad (\text{III.8})$$

Ainsi pour le pyromètre H322 utilisant les longueurs d'onde de 1,64 μm et 1,4 μm , pour une température de 2000°C et une incertitude sur le rapport d'émissivité des deux longueurs d'onde de 12% (cela correspond à une incertitude de 6% sur chaque mesure d'émissivité), l'incertitude sur la température mesurée est légèrement supérieure à 15%, soit 300°C. Cette grande incertitude de la méthode bichromatique comparée à la mesure monochromatique est due à l'utilisation d'un cas extrême dans l'évaluation : une émissivité sur-estimée de 6% pour une longueur d'onde, et sous-estimée de 6% pour une autre longueur d'onde. Une mesure ou estimation expérimentale du rapport d'émissivité permettrait d'atteindre une erreur bien plus basse et donc une incertitude sur la mesure de température beaucoup plus faible. Ce calcul met néanmoins en évidence la limitation de la mesure bichromatique : le rapport d'émissivité doit être bien connu et stable. Si nous nous basons sur nos pyromètres, et leurs caractéristiques (disponibles sur le tableau II), nous pourrions établir un rapport d'émissivité avec une incertitude inférieure à 1%. L'erreur serait alors de 20°C. Nous reviendrons sur ce point lors des calibrations hautes températures de l'EDM-3 (section C.2.b) et de l'UO₂ (section D.1.d).

C. Méthodes et procédures expérimentales

C.1. Boucle de régulation thermique

Un travail important pour nos expériences a été la mise en place d'une boucle de régulation Proportionnel-Intégral-Dérivé (PID) pour contrôler les montées et les paliers de température. Le schéma de principe d'une telle boucle de régulation est détaillé sur la figure III.18, avec au cœur du système l'appareil "Regulus RD" fourni par SensorTherm. Cet appareil récupère le signal issu du pyromètre (canal monochromatique ou bichromatique) pointant sur la zone centrale de chauffe, pour asservir la puissance du laser et contrôler la température suivant le programme défini par l'utilisateur (montée linéaire, plateau, etc. . .). En fonction des besoins, un ou deux pyromètres complémentaires peuvent être connectés pour réguler une plage pouvant aller de 50 à 3500°C.

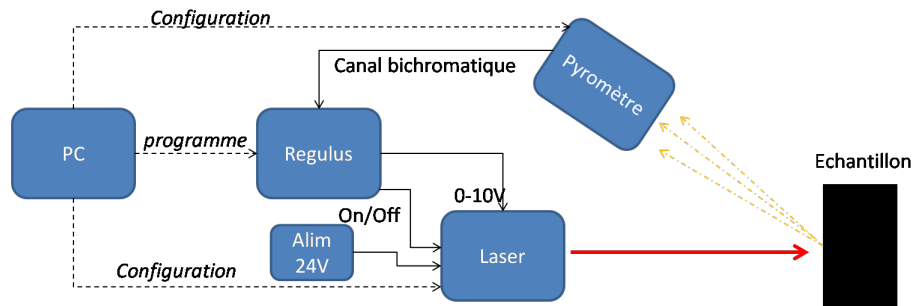


FIGURE III.18. – Schéma de principe de la boucle de régulation

Dans les expériences qui seront présentées, nous avons effectué des opérations standards à l'aide de ce système : rampe linéaire de montée en température puis maintien d'un palier avant un arrêt du laser ou une descente linéaire de la température jusqu'à l'arrêt de la source laser. Les rapports d'émissivité utilisés pour déterminer les températures mesurées par le pyromètre associé au régulateur PID sont décrits dans les chapitres suivants.

Un exemple de montée régulée en température est présenté sur la Figure III.19. La séquence programmée consistait à atteindre 2000°C en 45 s suivant une montée linéaire. Notons que dans cet exemple lorsque la cible a une température inférieure à 1300°C , le pyromètre utilisé est sous son seuil de mesure ($1300\text{-}3000^{\circ}\text{C}$) et le laser délivre dans ce cas une puissance constante (définie dans les paramètres de régulation) jusqu'à atteindre 1300°C . Puis, quand la cible atteint une valeur mesurable par le pyromètre, sur l'exemple à $t = 20$ s, le logiciel de commande dans cet exemple envoie une puissance importante pour que la température mesurée rattrape la température consigne. On observe ce pic de puissance juste avant que la température "rejoigne" la température cible. Ce pic de puissance a été bridé par un des paramètres de régulation (P_{max}) qui va limiter la puissance utilisable par le logiciel de commande. Sur l'ensemble de la suite de la chauffe linéaire, nous observons que la température mesurée et la température cible correspondent parfaitement.

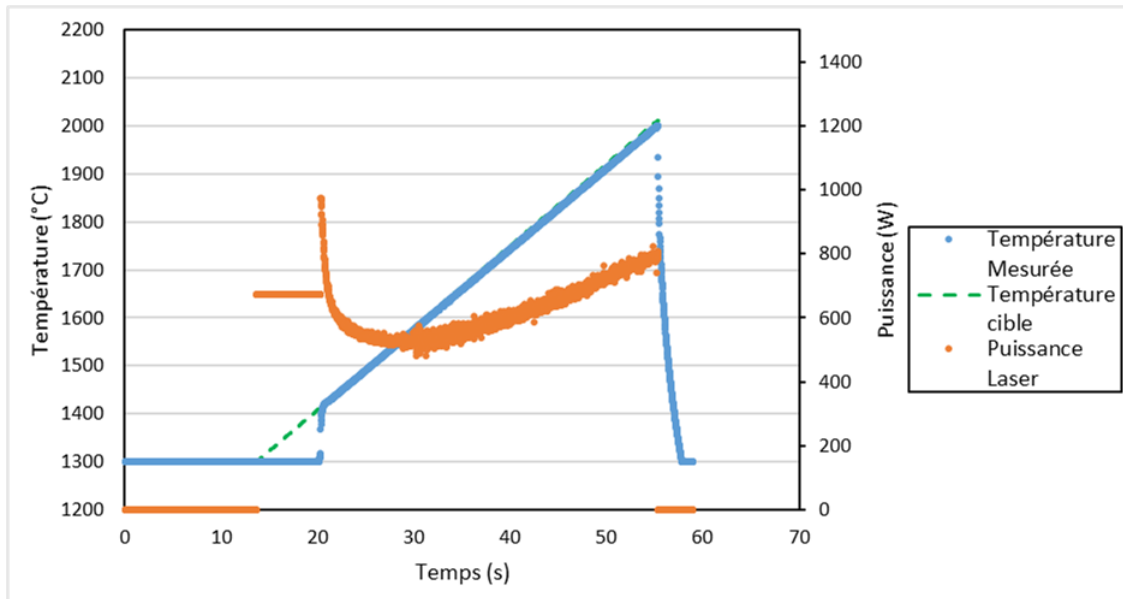


FIGURE III.19. – Température mesurée (courbe bleue) et programmée (courbe verte) d'une chauffe où la puissance émise (courbe orange) est régulée à l'aide du système PID

C.2. Calibration des instruments

Pour étalonner les caméras thermiques et les pyromètres nous avons utilisé une source de rayonnement de type corps noir (Newport 67033). Cette source est extrêmement uniforme et stable en température (incertitude de $0,3^{\circ}\text{C}$) sur une gamme de 50°C à 1200°C . La source se compose d'une cavité en céramique chauffée uniformément et régulée en température. Elle émet un rayonnement de corps noir, c'est-à-dire avec une émissivité de 0,99 (sur une bande spectrale de $0,5$ à $99\ \mu\text{m}$). Plusieurs diaphragmes sont également disponibles pour ajuster l'ouverture. Ainsi, nous pouvons vérifier la bonne calibration de notre instrumentation ou mesurer la transmission d'un hublot (Fig.III.20).

Il est important de respecter les mêmes conditions pendant la calibration et pendant l'expérimentation : c'est-à-dire la même distance entre la caméra et le hublot, le hublot et la source de rayonnement IR. Pour mesurer la transmission d'une ou plusieurs optiques, nous la ou les plaçons sur le trajet entre le capteur et la source de rayonnement, comme présenté sur la figure III.20. La source est ensuite paramétrée pour atteindre différents paliers 600°C , 700°C , 800°C ,..., 1200°C . Nous cherchons finalement à chaque palier, la valeur de transmission à utiliser sur le pyromètre ou la caméra pour mesurer la température de la source.

Les valeurs sont consignées dans le tableau IV avec dans un premier temps les mesures réalisées pour une utilisation d'une caméra IR (a) et dans un second temps les valeurs pour un pyromètre (b). Le "(45°)" correspond à l'angle d'incidence entre le pyromètre-source de rayonnement et l'optique en saphir, en effet dans les

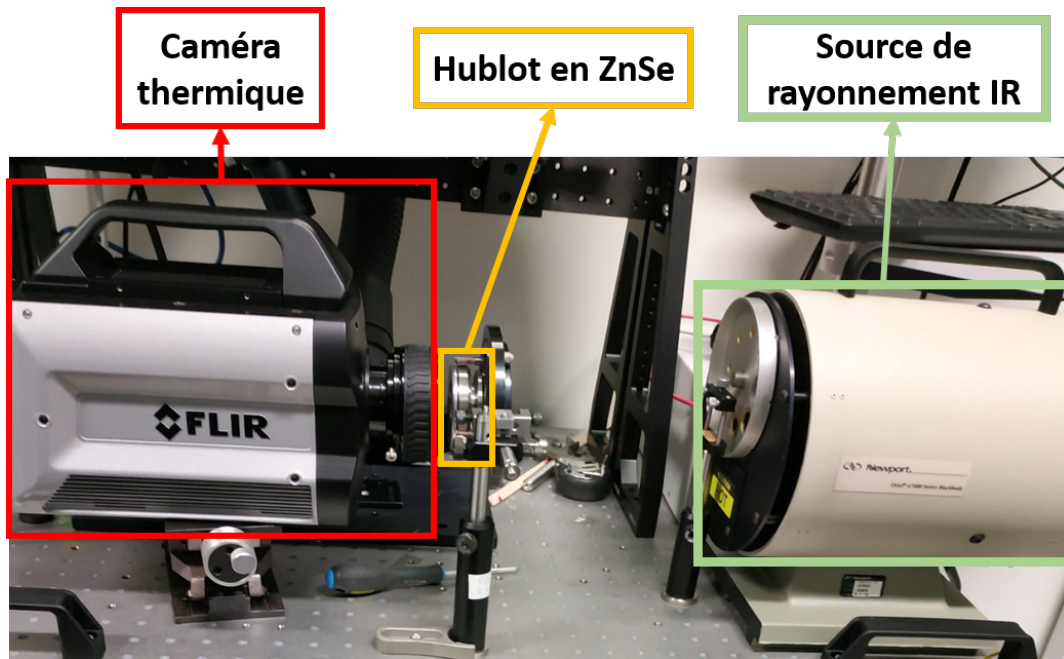


FIGURE III.20. – Montage de calibration de la caméra thermique avec un hublot en ZnSe à l'aide du corps noir

conditions expérimentales, nous observerons la pastille via le saphir avec un angle de 45° (section D.2.b).

Optique	Transmission
ZnSe	0,710
Saphir(45°)	0,865
ZnSe+Saphir(45°)	0,589
BaF ₂	0.805
Ge	0,710

(a) Tableau des transmissions pour la caméra IR.

Optique	Transmission
UVFS	0,998
Saphir	0,860
Saphir(45°)	0,850
UVFS+Saphir	0,805
UVFS+Saphir(45°)	0,800

(b) Tableau des transmissions pour les pyromètres

TABLE IV. – Tableaux des transmissions en fonction de l'instrumentation

C.3. Résolution des caméras thermiques

Pour définir la résolution spatiale de nos caméras thermiques, nous avons utilisé des mires de résolution 1951 USAF [131]. Une mire de résolution est un système proposant une grille de cibles de petites tailles (figure III.21). Le plus petit élément observable de manière distincte indique la limite de résolution.

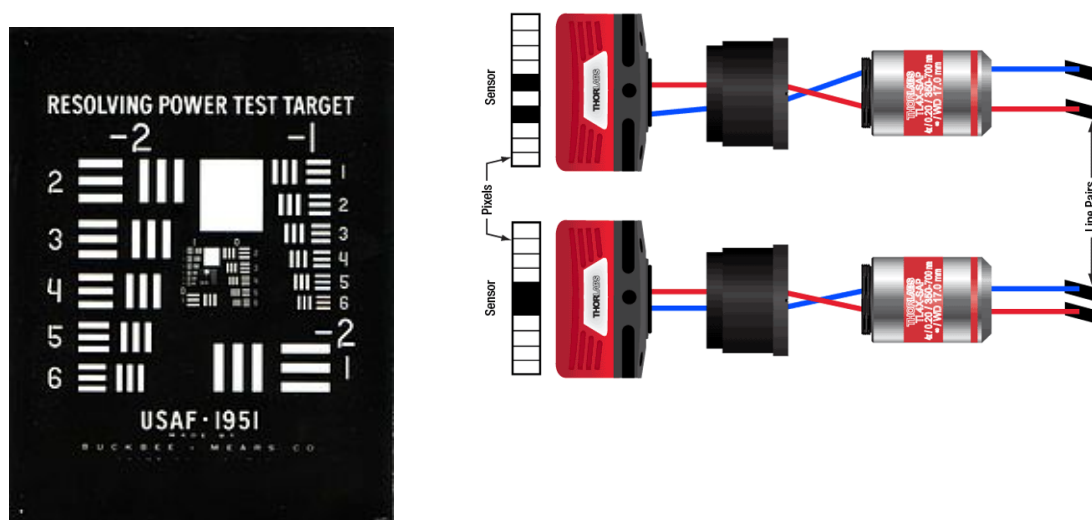


FIGURE III.21. – A gauche : Photo d'une mire. A droite : Schéma de principe de fonctionnement d'une mire (source de l'image : Thorlabs)

Il est important de définir la résolution de la caméra dans ses conditions réelles d'utilisation. Nous plaçons donc la mire dans les mêmes conditions que l'expérience : présence du hublot en ZnSe, de l'optique en saphir, et même distance de travail. Nous pouvons observer sur la figure III.22 à gauche, une photo où la mire est placée de manière perpendiculaire (incidence normale) à la caméra X8500sc. Nous n'observons pas de différence de résolution verticale et horizontale, et celle-ci est de 8 lp/mm (sur 1mm, la caméra peut détecter 8 lignes distinctes). La figure III.22 à droite se place dans les mêmes conditions, mais l'angle d'incidence est de 45° et non plus de 90°, afin de correspondre à la façon dont la caméra thermique vise la pastille d'UO₂ dans le porte-échantillon du scénario 2 (chauffe avec un faisceau annulaire d'une tranche de pastille).

Caméra X8500sc	Incidence normale	Incidence de 45°
Résolution Horizontale (μm)	62,5	88,9
Résolution Verticale (μm)	62,5	111,3

TABLE V. – Tableau des mesures de résolution horizontale et verticale de la caméra X8500sc pour un angle d’incidence de 90 et 45°

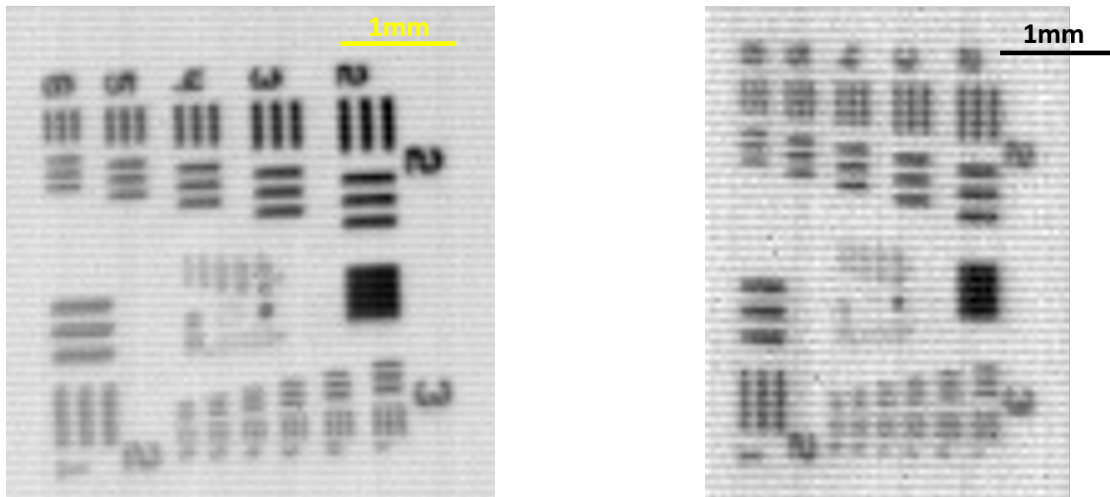


FIGURE III.22. – A gauche : photo de la mire perpendiculaire à la caméra X8500sc. A droite : Photo de la mire à travers le saphir avec un angle de 45° (similaire à l’angle d’observation de la pastille in-situ)

Ces images ont été obtenues par des caméras thermiques sur une cible (la mire) avec une température homogène, ainsi l’image obtenue est peu contrastée car nous n’observons que des variations d’émissivité.

C.4. Caractérisation des faisceaux

Dans la partie de présentation de sources lasers, nous avons exposé des mesures du profil de faisceau et de puissance du faisceau. Ces données ont été obtenues respectivement par deux profilomètres lasers (Tableau VI) et un calorimètre. Pour chaque série d’expérience nous avons caractérisé le faisceau ou les faisceaux lasers dans la chambre expérimentale, afin de prendre en compte les pertes des différentes optiques sur le trajet du laser et les différents phénomènes pouvant altérer la géométrie et la puissance totale du faisceau. Le but est d’avoir la plus grande précision sur nos comparaisons entre résultats expérimentaux et modélisations numériques. Sur la figure III.24, nous présentons deux photos, de deux faisceaux lasers différents, obtenues avec les deux profilomètres. Le profilomètre Beamage-4M est associé à un atténuateur permettant de mesurer des profils de faisceau jusqu’à 500W (système BA16K-500F-H9-D0 comportant une séparatrice permettant de

faire l'observation directe du faisceau, tel que représenté sur la figure III.23). Des mesures du profil peuvent être faites avec cet appareil en s'affranchissant de filtres atténuateurs, qui peuvent altérer le faisceau.

Modèle	Gamme Spectrale	Capteur	Définition	Taille d'un pixel	H x V
WinCamD	355-1150	CCD	1.4M	4.65 μm	1360 x 1024
Beamage-4M	350-1150	CMOS	4.2 M	5.5 μm	2048 x 2048

TABLE VI. – Tableau des caractéristiques des profilomètres lasers

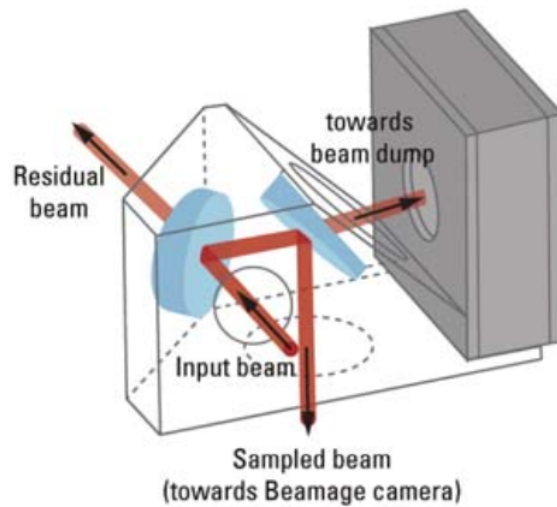


FIGURE III.23. – Schéma du système Gentec-eo

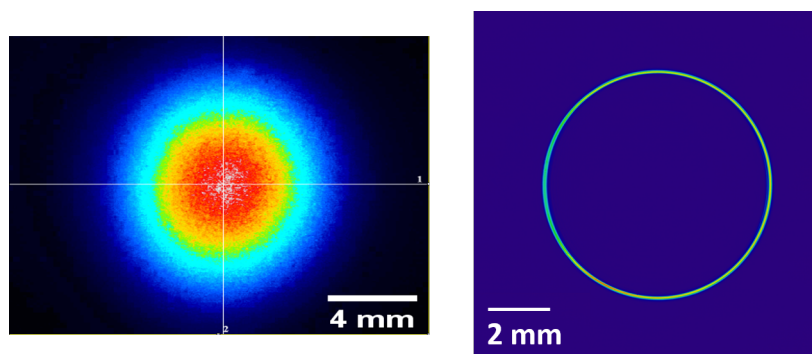


FIGURE III.24. – A gauche : Photo du faisceau gaussien (Image WinCamD). A droite : Photo d'un faisceau gaussien annulaire (Image Gentec-eo)

D. Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté l'ensemble de la plateforme expérimentale, de l'enceinte refroidie aux porte-échantillons ainsi que l'ensemble de l'instrumentation de mesure ou de caractérisation/calibration. Nous avons présenté tout d'abord le laser principal qui sera utilisé pour les rampes rapides en températures. Nous avons aussi décrit le second laser, qui sera utilisé dans le chapitre suivant pour préchauffer l' UO_2 . Deux porte-échantillons ont été présentés, un pour chaque scénario, chauffe d'une pastille pleine ou chauffe d'une tranche avec un faisceau annulaire, en prenant en compte les spécificités de la chauffe et la résistance à de hautes températures tout en laissant des accès à l'instrumentation. Cette dernière est divisée en trois grandes classes, les thermocouples pour une mesure locale à la surface ou à l'intérieur de l'échantillon (via un perçage et une colle haute température métal/céramique), les pyromètres pour une mesure locale en surface et dans certains cas indépendante de l'émissivité du matériau, les caméras thermiques pour des mesures d'une face de l'échantillon. Différentes procédures expérimentales et outils complémentaires permettent une meilleure exploitation de la plateforme. Tout d'abord la boucle de régulation thermique couplant le laser principal aux pyromètres et permettant via un appareil intermédiaire de contrôler la puissance laser pour réaliser des rampes linéaires de montée en température, des paliers de température avec une grande précision et rapidité. Ensuite, nous avons présenté la calibration via un corps noir, des caméras et pyromètres, pour mesurer les transmissions des optiques utilisées. Nous avons présenté aussi les deux profilomètres lasers dont l'objectif est de caractériser le faisceau, après mise en forme (qu'il soit focalisé comme pour les expériences sur le graphite EDM-3 ou qu'il soit réparti en un faisceau annulaire tel que décrit par la suite). Pour tester les différents protocoles de calibration, de régulation et le modèle numérique présenté au chapitre précédent, des essais expérimentaux ont été réalisés sur le graphite EDM-3, comme matériau modèle. En effet ce dernier possède des propriétés optiques proches de l' UO_2 et une température d'utilisation très haute (3500°C). Ceci est l'objet du prochain chapitre.

IV. Études d'un matériau modèle : le graphite EDM3

Sommaire

A	Introduction	115
B	Propriétés du Graphite EDM-3	115
B.1	Propriétés thermo-physiques	116
B.2	Température de changement de phase	117
B.3	Propriétés optiques	118
C	Expériences de chauffage Laser du Graphite EDM-3	127
C.1	Échantillons et configurations expérimentales	128
C.2	Calibration sur le graphite EDM-3	131
C.3	Premières expériences de chauffe à très haute température	138
C.4	Chauffes à puissance constante	141
C.5	Chauffes régulées en température	146
D	Confrontation Expérimentation/Simulation	147
D.1	Chauffes à puissance constante	147
D.2	Chauffes régulées en température	150
E	Conclusion	151

A. Introduction

Le chapitre précédent a permis de décrire en détail les moyens expérimentaux que nous avons développés pour atteindre nos objectifs, à savoir appliquer des transitoires thermiques pulsés à haute température sur l' UO_2 . Cependant, avant de passer à l'étude de ce matériau, complexe à gérer dans un laboratoire de recherche et dont nous disposons en faible quantité pour la thèse, nous avons fait le choix de travailler, dans un premier temps, sur un matériau modèle dans le cadre d'étapes préliminaires. Ces étapes regroupent les expériences d'étalonnage de l'instrumentation, le développement de la boucle de régulation thermique, la mise en forme du faisceau laser et la comparaisons expériences/simulations. Tous ces points seront décrits dans la suite du document. Le matériau modèle (ou postiche) devant remplacer l' UO_2 devait répondre à certains critères primordiaux. Tout d'abord, une propriété cruciale dans notre situation était le comportement du matériau sous flux laser, qui devait se rapprocher de celui de l' UO_2 et donc pour cela avoir des propriétés optiques suffisamment proches : matériau très absorbant à la longueur d'onde du laser et d'émissivité élevée. Un autre élément clé était la température de fusion : l'échantillon postiche doit supporter des températures pics d'au moins 2500 °C. Enfin le matériau modèle devait avoir des propriétés thermiques connues pour l'intégrer dans le modèle numérique. Le matériau retenu est le graphite de type EDM-3 (référence du fabricant). Le graphite présente en effet des propriétés avantageuses pour les applications nécessitant des températures élevées, en particulier des températures de changement de phase très élevées. Ce matériau se caractérise également par une excellente résistance aux chocs thermiques, propriété extrêmement avantageuse lors des expériences de chauffage laser, qui garantit l'intégrité de l'échantillon lors de brusques baisses de température (aucun dommage sur les échantillons n'a été constaté lors des campagnes d'expériences). Par ailleurs il s'agit d'un matériau modèle pour des études effectuées au CEA-DAM avec qui nous avons collaboré sur ce sujet, ce qui nous a permis d'obtenir ses propriétés thermiques qui étaient très bien connues.

Après une description des propriétés de ce matériau sur la base d'une étude bibliographique, nous présenterons les différentes expériences effectuées, puis nous comparerons les résultats de nos études au modèle numérique de l'interaction Laser/matière présenté dans le chapitre II.

B. Propriétés du Graphite EDM-3

Le graphite EDM-3 est un matériau fabriqué par POCO Graphite Inc. Il s'agit d'un graphite polycristallin produit par frittage. Ce matériau est utilisé principalement pour ses propriétés électriques, en tant qu'électrode pour l'EDM : EDM (Electrical Discharge Machining). Il existe différentes qualités de graphite EDM avec des propriétés significativement différentes, principalement liées à la microstructure. L'EDM-3 est l'une des versions dites "Ultrafines", caractérisée par une

granulométrie moyenne inférieure à 5 microns. Il a une porosité d'environ 20% et il est macroscopiquement homogène avec un degré élevé d'isotropie. Le choix de ce matériau est lié au programme expérimental mené par le CEA CESTA sur l'EDM-3, qui l'utilise comme matériau modèle dans le cadre d'études du comportement de matériaux à haute température. La modélisation fine de l'interaction laser/matière pour calculer les élévations de température requiert en effet une connaissance précise de l'évolution des propriétés thermiques avec la température. Nous reportons donc dans les sections suivantes des extraits de la documentation POCO répertoriant les données de référence [132].

B.1. Propriétés thermo-physiques

Nous rappelons dans le Tableau I la conductivité thermique et la capacité calorifique du graphite EDM-3 à température ambiante. On notera notamment sa conductivité thermique élevée, paramètre déterminant dans les expériences de chauffage laser.

Densité	Conductivité	Capacité Calorifique
2,62 g/cm^3	90 $W/m/K$	0,72 $J/g/K$
À température ambiante		

TABLE I. – Tableau des Caractéristiques principales du graphite

Ces paramètres sont fortement dépendants de la température et nous reportons dans les figures IV.1 et IV.2 leurs évolutions. On notera notamment une très forte dépendance de la conductivité thermique avec la température (diminution de la conductivité avec l'élévation de la température), et l'absence de données sur ce paramètre à plus de 2000°C.

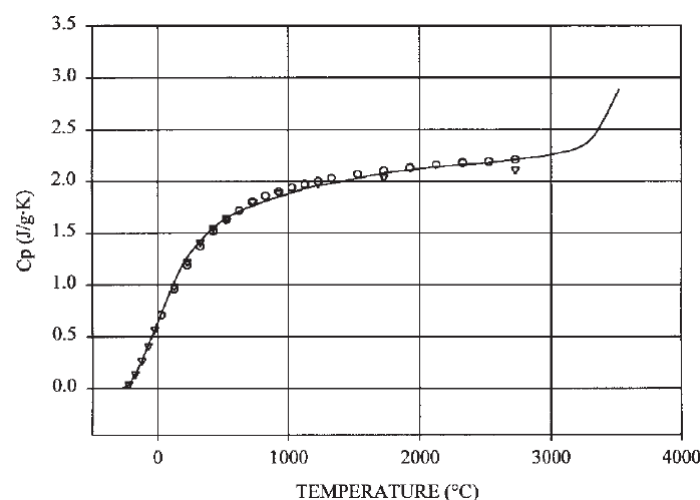


FIGURE IV.2. – Capacité calorifique du graphite en fonction de la température [132]

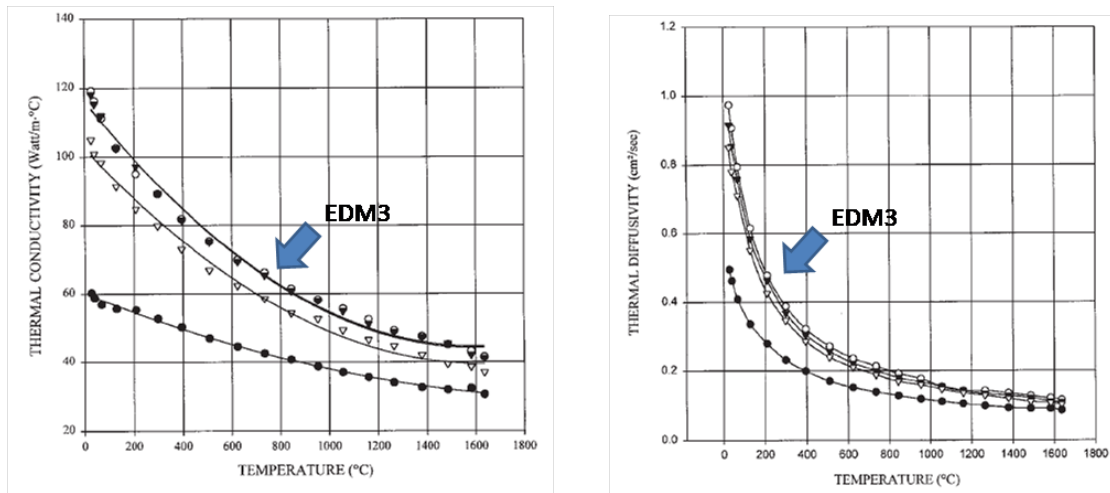


FIGURE IV.1. – A gauche : Conductivité thermique du graphite en fonction de la température [132]. A droite : Diffusivité thermique du graphite en fonction de la température [132]

B.2. Température de changement de phase

Le graphite présente des propriétés particulièrement intéressantes pour des applications nécessitant l'atteinte de hautes températures, notamment une température de changement de phase (solide / vapeur) très élevée ce qui permet de maintenir l'intégrité de l'échantillon. A basse pression, inférieure à 1 bar dans nos conditions expérimentales, le graphite se sublime dans sa phase vapeur à une température proche de 4000°C d'après Bundy [133] qui a effectué une synthèse approfondie sur ce sujet.

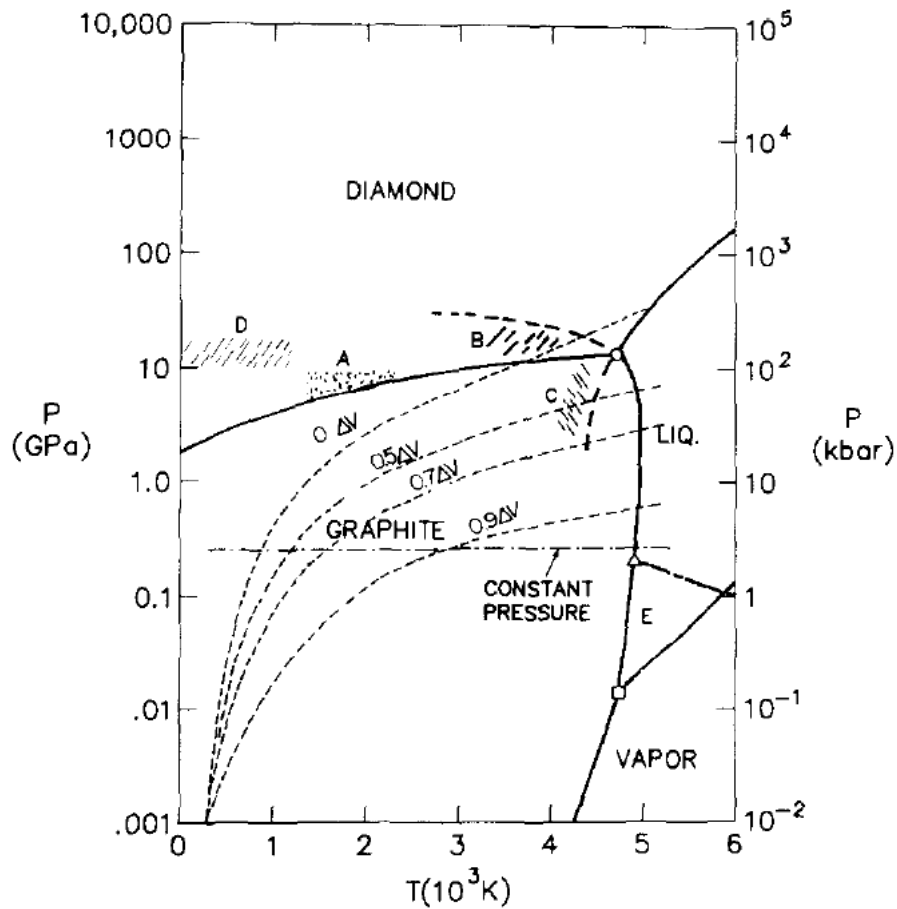


FIGURE IV.3. – Diagramme de phase du graphite [133]

B.3. Propriétés optiques

Si les propriétés thermiques de l'EDM-3 sont bien connues, les propriétés optiques ne l'étaient pas au début de cette thèse. Par conséquent, tout comme pour l' UO_2 , nous passerons par une étape de calibration pour déterminer au mieux ces valeurs dans les conditions expérimentales (dépendantes de l'état de surface du matériau, de sa température). Néanmoins les valeurs relevées dans la littérature constituent le point de départ et nous résumons ci-après les données à notre disposition.

B.3.a. Emissivité

D'après Cezairliyan et Righini [134] l'émissivité du graphite EDM de 1700 K à 2900 K peut s'exprimer par la dépendance suivante en température (en K) :

$$\varepsilon(T) = 0,794 + (2,28 \cdot 10^{-5}) \cdot T \quad (\text{IV.1})$$

Il s'agit de la seule donnée disponible dans la note POCO. Cette note souligne en effet le peu de données disponibles dans la littérature. Outre les travaux de Cezairliyan et Righini, effectués par une technique de chauffage laser, nos recherches sur ce sujet ont abouti à considérer également les travaux suivants :

- Autio et Scala [135] ont étudié l'effet de la structure du graphite (orientations cristallographiques, porosité) et de l'état de surface (polie ou rugueuse) sur l'émissivité spectrale (1,5 à 13 μm) en fonction de la température (800 à 1200°C). Le graphite utilisé est de type UF-4-S fourni par Ultra Carbon Corp. La technique employée consiste à comparer le rayonnement émis dans une bande spectrale étroite définie par un monochromateur à celui d'un corps noir acquis dans les mêmes conditions expérimentales. Les résultats essentiels sont donnés sur la figure IV.4. On retiendra les points importants suivants, tirés de cet article : 1) dans la gamme de température explorée, les variations d'émissivité avec la température sont assez faibles (sur surface rugueuse); 2) une différence importante est observée entre une surface polie et une surface rugueuse : une surface rugueuse a une émissivité plus élevée (autour de 0,85) que la surface polie ($<0,7$), ce qui est attribué à l'effet des pores et irrégularités de surfaces (effet de cavité pour l'émissivité), et la surface rugueuse se comporte comme un corps gris (très faible dépendance spectrale). L'effet de l'augmentation de l'émissivité du graphite avec la rugosité de surface est également démontré expérimentalement dans les travaux plus récents de Wang et al [136]

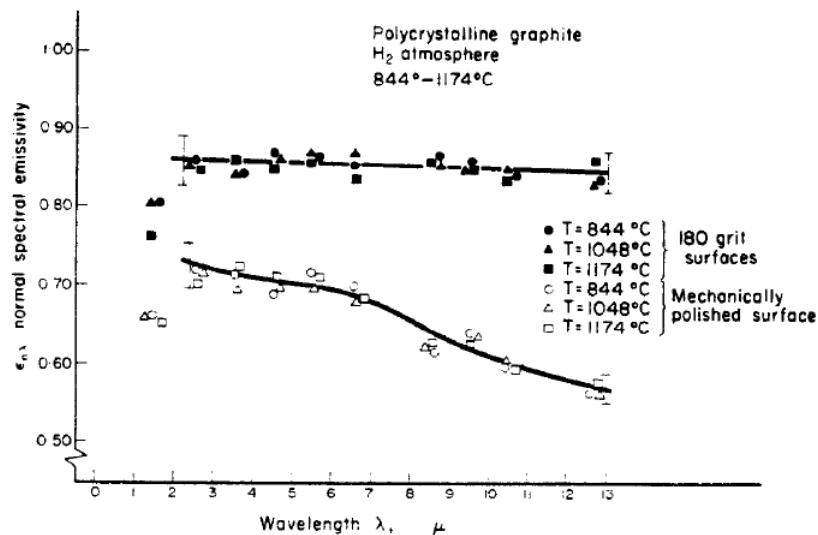


FIG. 6. Polycrystalline graphite data.

FIGURE IV.4. – Valeurs mesurées de l'émissivité spectrale du graphite [135]

- G. Neuer [137] avec des méthodes similaires à Autio et al [135], ont étudié l'émissivité spectrale et totale du graphite (bande 0,6 à 6,8 μm) dans la gamme de température 1000-2000 K. Les propriétés du graphite sont sensible-

ment différentes de l'EDM-3 : densité et conductivité plus faibles, indiquant une porosité plus élevée. L'état de surface est décrit comme rugueux avec présence de cavités de plus de 10 μm . L'émissivité mesurée est assez élevée, certainement du fait de cette rugosité de surface importante (Fig.IV.5), et décroît sensiblement avec la longueur d'onde. L'émissivité totale quant à elle présente une légère élévation avec la température.

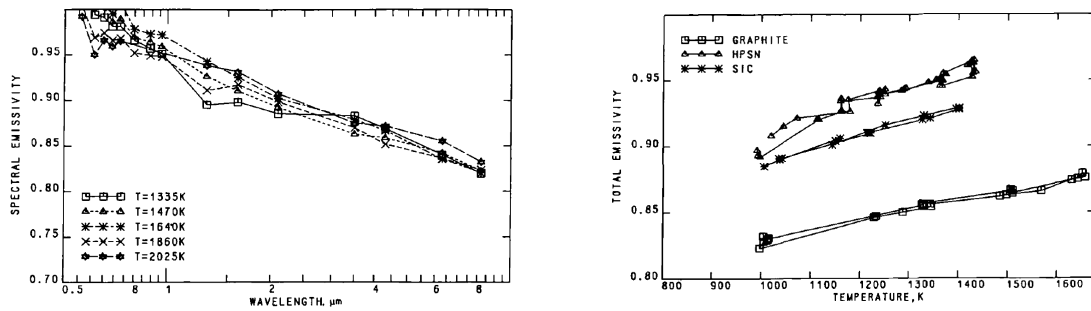


FIGURE IV.5. – A gauche : Valeurs mesurées de l'émissivité spectrale du graphite [137]. A droite : Emissivité totale du graphite [137]

— Matsumoto et Ono [138] décrivent quant à eux une méthode de chauffage par effet Joule de matériaux conducteurs couplée à des mesures pyrométriques, qu'ils ont appliqué à du graphite POCO AXM-5QI, qui est un graphite présentant une porosité plus élevée que l'EDM-3, pour déterminer des émissivités spectrales et totales dans la gamme 1500-3000 K. Les résultats sont présentés figure IV.6.

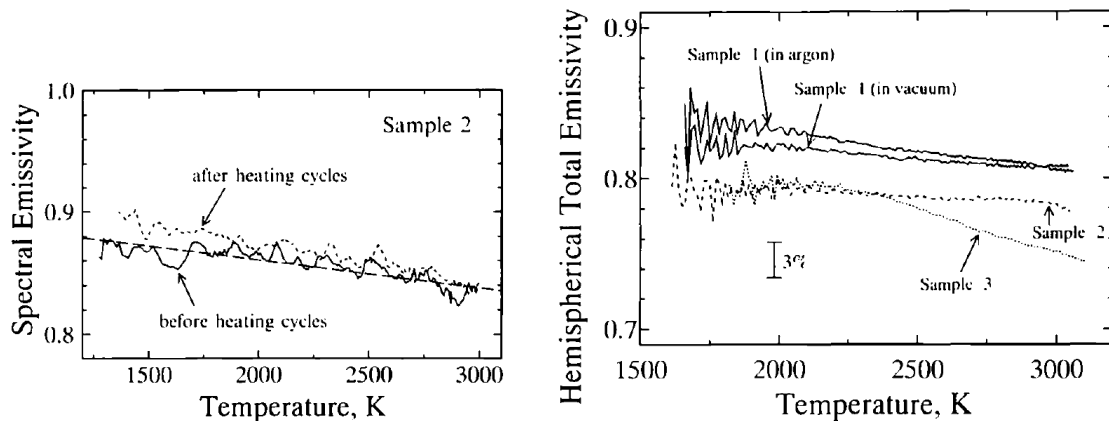


FIGURE IV.6. – A gauche : Emissivité spectrale du graphite POCO AXM-Q [138]. A droite : Emissivité totale du même matériau [138]

— Krenek et al [139] ont effectué des mesures d'absorption / émissivité du graphite à 1064 nm, en utilisant un système commercial de mesure de propriétés thermiques par méthode flash laser (en utilisant un échantillon de propriétés

thermiques connues, la méthode est utilisée pour déterminer l'absorption). Ces travaux sont particulièrement intéressants puisqu'ils rapportent l'absorption à la longueur d'onde du laser que nous avons utilisé dans la gamme 1000 à 1800 K. Les résultats sont obtenus sur un graphite de type R6650 (SGL Carbon SE) de propriétés similaires à l'EDM-3, mais dont l'état de surface n'est pas précisé (cf.Fig.IV.7).

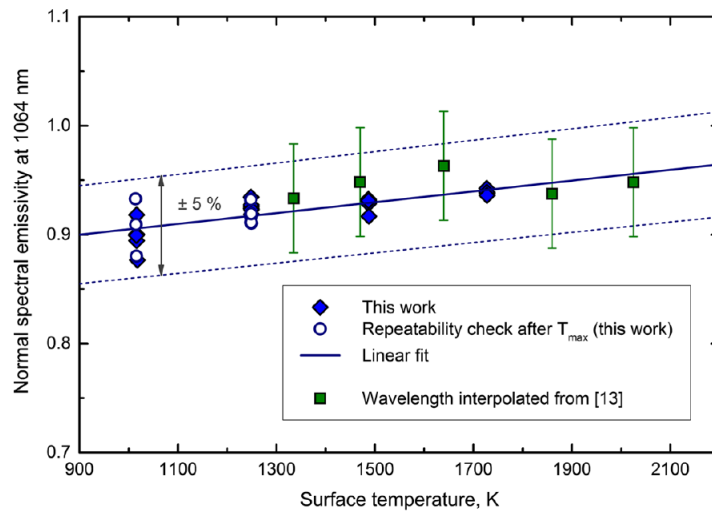


FIGURE IV.7. – Emissivités mesurées à 1064nm [139]

- Le même groupe a développé une autre expérience basée sur le même principe (Urban et al [140]) , i.e. une méthode flash laser pour mesurer l'émissivité du graphite dans une bande spectrale étendue (500-1100 nm) entre 1000 et 1700 K. Sur le même graphite que dans leur précédente publication les valeurs déterminées sont similaires à celles de Neuer présentées précédemment.
- Certains des résultats précédents sont repris dans la publication de Hay et al [141] qui présente une étude comparative de différentes mesures effectuées dans des laboratoires de métrologie Européens, dans le cadre des matériaux pour la fusion. L'expérience disponible au Laboratoire National d'Essai pour la mesure d'émissivité spectrale jusqu'à 2000 K est notamment décrite (basée également sur une méthode laser flash). Les valeurs d'émissivité spectrales sur un graphite de type R6650P5 (SGL Carbon group) sont données Figure IV.8. L'article présente également les résultats de variation d'émissivité avec la température à 1064 nm, qui sont les mêmes que dans la publication de Krenek (même système de mesure).
- Gonzales et al. [142] ont étudié l'émissivité de différents types de graphites et leur évolution après un chauffage laser (15 kW) sous atmosphère oxydante (1500-3100 K). 3 graphites Graphtek sont étudiés (PG-SN, GM-A0, GR008G), les propriétés du 2ème (GM-10) étant celles qui se rapprochent le plus de l'EDM-3 (densité, conductivité et taille de grain). Les émissivités sont

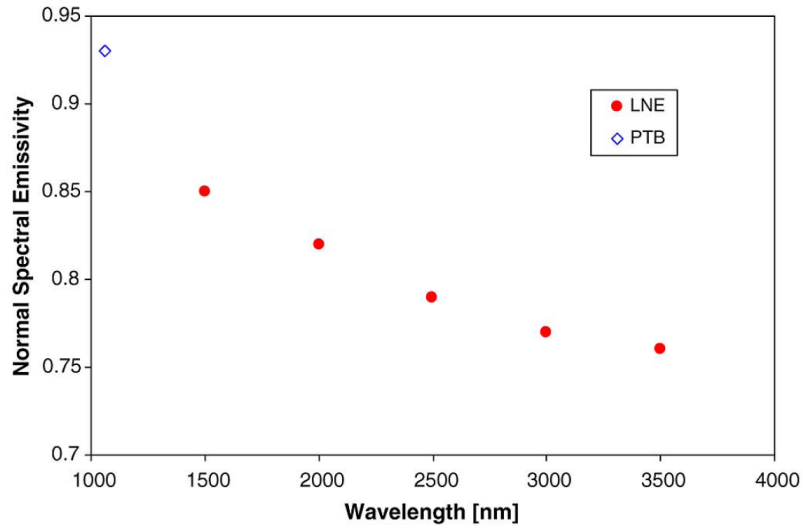


FIGURE IV.8. – Emissivité spectrale du graphite à 1250°C [141]

déterminées à l'aide d'un spectromètre à Transformée de Fourier couplé à un module commercial de mesure d'émissivité totale dans la gamme 20°C-500°C. L'émissivité mesurée du GM-A0 est de 0,88 (0,90 après endommagement laser), sans dépendance de température dans la gamme explorée.

- Un système assez similaire est utilisé par Ren et al [143] pour étudier l'émissivité du graphite (type et état de surface non décrits) dans une large gamme spectrale (2-25 μm) de 800°C à 1600°C. Les mesures, présentées Figure IV.9, sont cependant faites sous air et affectées des bandes d'absorption de l'air ($\text{H}_2\text{O}, \text{CO}_2$). On note encore une faible dépendance à la température.

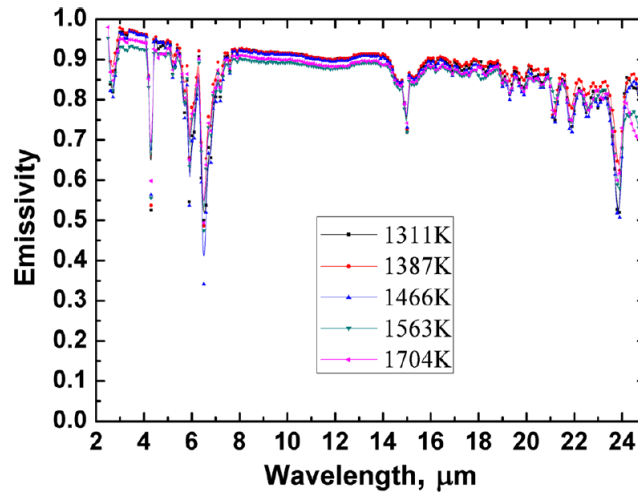


FIGURE IV.9. – Emissivité spectrale du graphite entre 1311 et 1704 K [143]

- Fu et al [144] ont développé une méthode originale de mesure d'émissivité spectrale à haute température, basée sur la mesure spectrale du flux diffusé sur la surface à analyser. Les valeurs mesurées (sur du graphite 99,9% mais sans référence) sont d'intérêt car elles se situent dans la bande spectrale des pyromètres que nous utilisons (Fig.IV.10). Ces données montrent une légère augmentation de l'émissivité avec la longueur d'onde, résultat opposé aux autres publications.

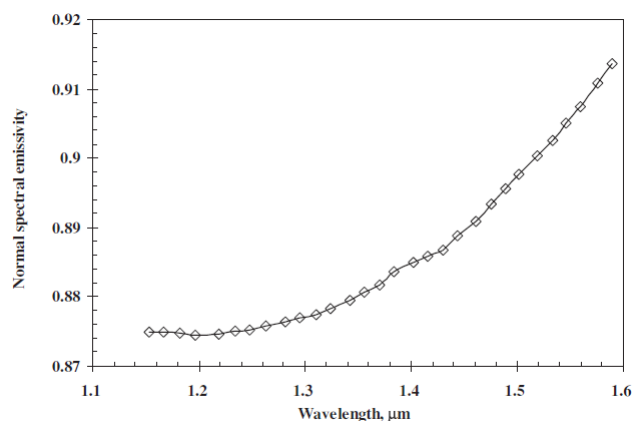


FIGURE IV.10. – Emissivité spectrale du graphite à 879 K [144]

- Enfin on peut trouver dans la publication de Biasetto et al.[145] des mesures sur du graphite de type EDM-3, effectuées par des expériences de pyrométrie bichromatique. Les données (reportées sur la Figure IV.11) ont cependant été obtenues en fixant arbitrairement un ratio d'émissivité de 1 au pyromètre bichromatique (fonctionnant dans le proche infrarouge). Des résultats confirment également l'effet du polissage (Fig.IV.12).

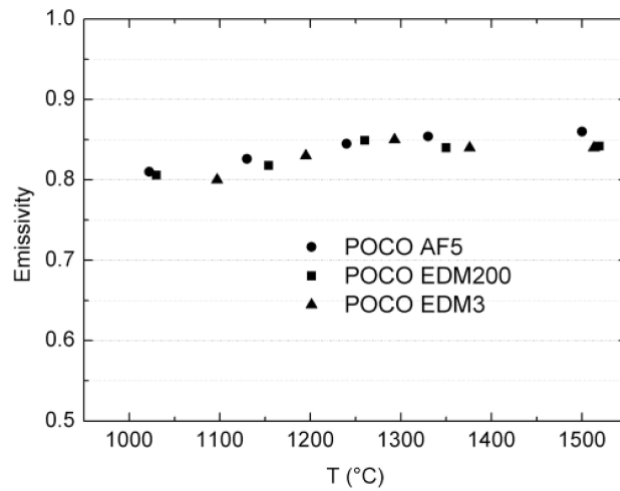


FIGURE IV.11. – Émissivité totale en fonction de la température [145]

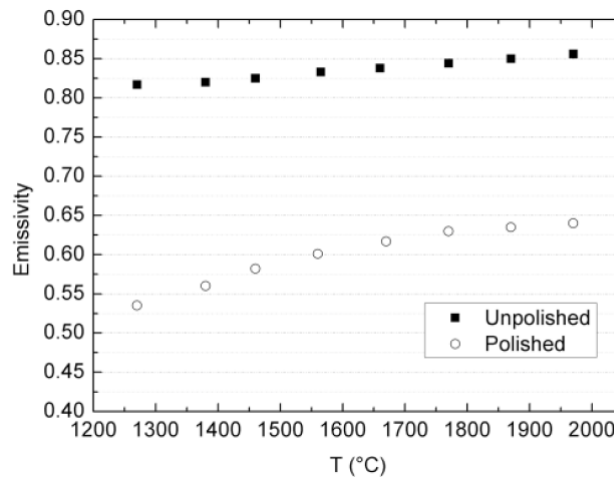


FIGURE IV.12. – Effet de l'état de surface sur l'émissivité totale en fonction de la température [145]

- D'autres publications intéressantes peuvent être citées même si les données reportées sont moins pertinentes pour notre étude : Kostanovskii et al [146] qui reportent des valeurs d'émissivité mesurées jusqu'à 3000 K mais à 0,65 μm , de même pour Pavlov et al [147] à l'aide d'une méthode Laser Flash. Yousef et al [148] présentent des mesures de l'émissivité spectrale (bande 300-1100 nm) et la dépendance angulaire de l'émissivité. Watanabe et al [149] présentent des mesures d'émissivité totale dans la gamme 1000-1800 K mais sur un type de graphite différent.

Nous retiendrons finalement les points suivants :

- L'émissivité totale du graphite EDM-3 présente une émissivité à température

ambiante dans la gamme de 0,8-0,85, avec des dépendances à l'état de surface. Il existe des résultats divergents quant à l'évolution de cette émissivité avec la température (valeurs résumées dans la Figure IV.13). Dans tous les cas peu de données sont disponibles dans la littérature sur ce point.

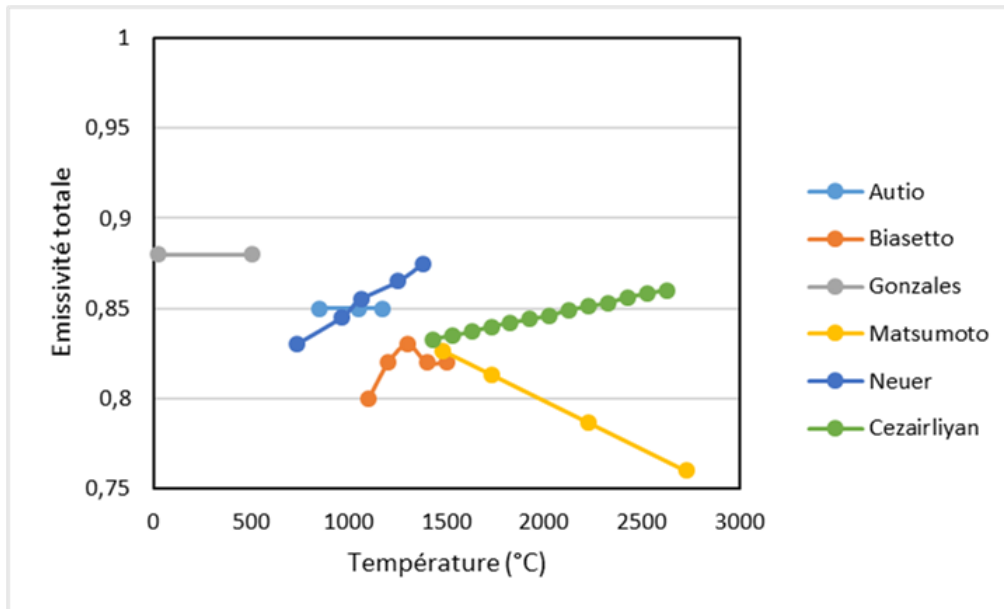


FIGURE IV.13. – Valeurs d'émissivité totale relevées dans la littérature

- Spectralement l'émissivité semble décroître lorsque la longueur d'onde augmente dans la bande du proche infrarouge qui nous concerne pour les expériences (pyromètres, laser). Une seule étude diverge par rapport aux autres sur ce point (sur un type de graphite non référencé et sur une expérience originale très différente de l'état de l'art). La dépendance spectrale de l'émissivité peut avoir une origine dans l'effet de la rugosité de surface : les grandes longueurs d'onde "voient" une surface plus lisse, caractérisée par une plus faible émissivité (cf. point suivant). Nous avons relevé dans la Figure IV.14 les valeurs d'émissivité autour de 1 μm (laser), 1,5 μm (pyromètre) et 0,65 μm (différents jeux de données disponibles à cette longueur d'onde). Là aussi, il est difficile de dégager des tendances claires si ce n'est que l'émissivité à 1-1,5 μm est beaucoup plus élevée que l'émissivité totale (dans la gamme 0,9-0,95) et que la tendance est à l'augmentation avec la température. Nous reviendrons sur ces points lors de la partie « calibration » dans laquelle nous comparerons nos valeurs à celles de la littérature.
- L'état de surface est un point très important : une surface rugueuse présente une émissivité beaucoup plus élevée qu'une surface lisse, par l'effet de « cavité » créé par les aspérités de surface [150].

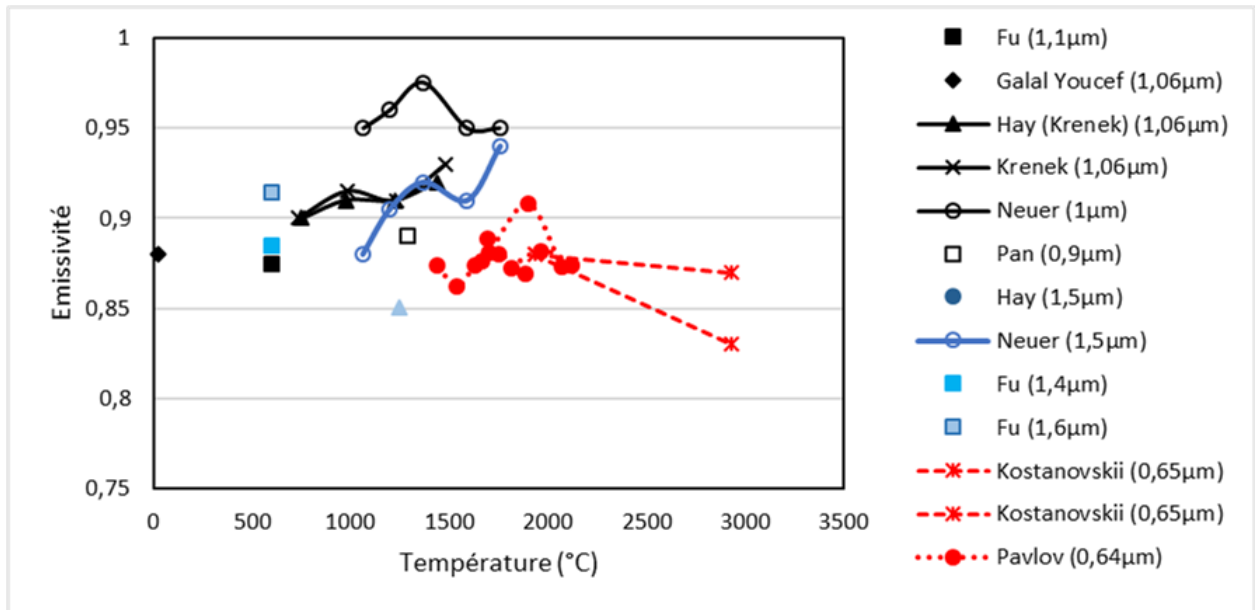


FIGURE IV.14. – Valeurs d'émissivité relevées dans la littérature pour 3 domaines de longueurs d'onde

B.3.b. Coefficient d'extinction

En complément des données précédentes, R. J. Papoular et al [150] nous permet d'avoir des valeurs à différentes températures du coefficient d'extinction du graphite à nos longueurs d'onde d'intérêt (Figure IV.15). Sur la gamme de température 10-300 K, bien qu'éloignée de notre gamme d'utilisation, le coefficient d'absorption semble indépendant de la température et est à une valeur proche de 1 dans le proche infrarouge. Ceci nous permettra de considérer que l'absorption/émission du rayonnement est intégralement surfacique (épaisseur de peau <100 nm). Les résultats sont présentés sur la figure ci-dessous :

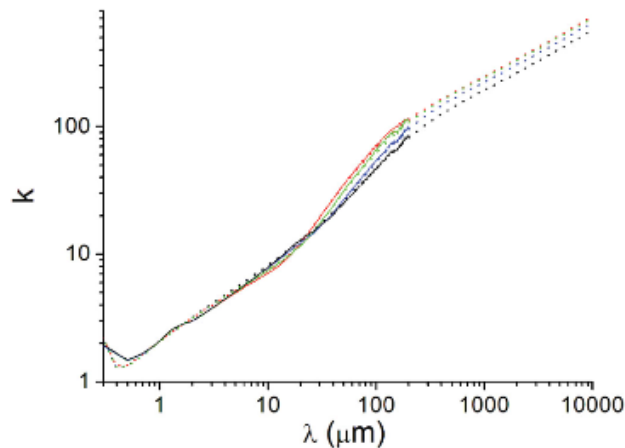


FIGURE IV.15. – Coefficient d’extinction du graphite. La courbe rouge est à 300 K, en vert 200°K, 100°K en bleu et enfin en noir 10 K [150]

C. Expériences de chauffage Laser du Graphite EDM-3

La méthodologie mise en place durant cette thèse consiste à reproduire les gradients thermiques types d’un RIA sur un matériau modèle, cela afin de s’assurer de la maîtrise de chaque élément (instrumentation, géométrie du faisceau, rampe thermique), pour au final procéder à des expérimentations sur UO_2 dans une configuration aboutie et éprouvée.

Nous avons mené différentes séries d’expériences sur le graphite EDM-3, dont nous allons présenter quelques exemples et expliquer leurs intérêts dans le cadre de la thèse. Ces expériences ont été menés en collaboration avec Jean-Luc Rullier du CEA CESTA dont l’objectif était d’étudier des propriétés du matériau à très haute température. Certaines de ces expériences n’ont donc pas été conduites spécifiquement pour la thèse mais leur réalisation dans le cadre de la thèse comportait des intérêts variés (avec à terme de permettre la réalisation d’une chauffe type RIA, sur l’EDM-3) :

- meilleure expertise sur le matériau
- meilleure maîtrise de la plateforme expérimentale et en particulier de l’instrumentation
- validation du modèle numérique

Dans un premier temps nous présenterons le dispositif expérimental nous ayant permis de mesurer l’absorption à froid d’un matériau et son application sur l’EDM-3 (section C.1), ensuite nous décrirons deux configurations expérimentales utilisées pour étalonner l’instrumentation IR sur ce matériau modèle (section C.2) et enfin nous terminerons par une présentation des différentes études réalisées (section C.3) et par une confrontation des résultats obtenus expérimentalement à ceux obtenus

par le modèle numérique (section D).

C.1. Échantillons et configurations expérimentales

Différents échantillons ont été utilisés dans cette étude, suivant 2 géométries principales : des disques et un parallélépipède. Par souci de clarté nous avons référencé tous les échantillons de graphite EDM-3 en annexe (C).

Pour mesurer l'absorption à froid de nos échantillons de graphite nous avons utilisé un montage développé au laboratoire (équipe CONCEPT). A travers une ouverture dans une sphère intégrante, un faisceau collimaté provenant d'une source blanche (lampe halogène régulée) éclaire la surface d'intérêt (moins d'1 mm²). La lumière réfléchie sur la surface lambertienne interne de la sphère est ensuite collectée par une fibre optique et analysée grâce à un spectromètre (Fig.IV.17). Le spectromètre utilisé avec la sphère intégrante a une gamme de mesure comprise entre 500 nm et 1083 nm. Les valeurs obtenues sont reportées sur la Figure IV.16. Celles qui nous intéressent particulièrement sont à 1080 nm, la longueur d'onde du laser. Dans cette zone les valeurs deviennent bruitées car proches de la limite du spectromètre (1083 nm), néanmoins il est possible d'obtenir des résultats exploitables. L'absorption du matériau à la longueur d'onde du laser peut alors être déterminée comme $A=1-R$ (avec A, l'absorption et R, la réflexion), la transmission étant nulle pour des échantillons de graphite.

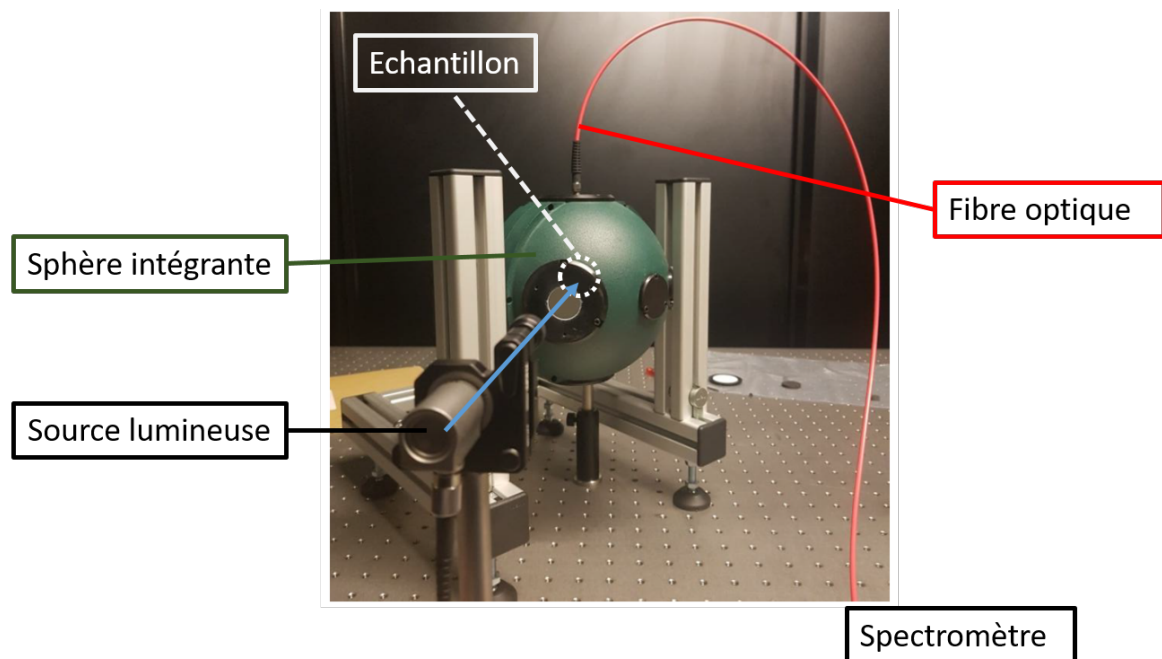


FIGURE IV.17. – Photo du montage utilisant la sphère intégrante

Les valeurs obtenues sont dans la gamme correspondant à ce que nous avons

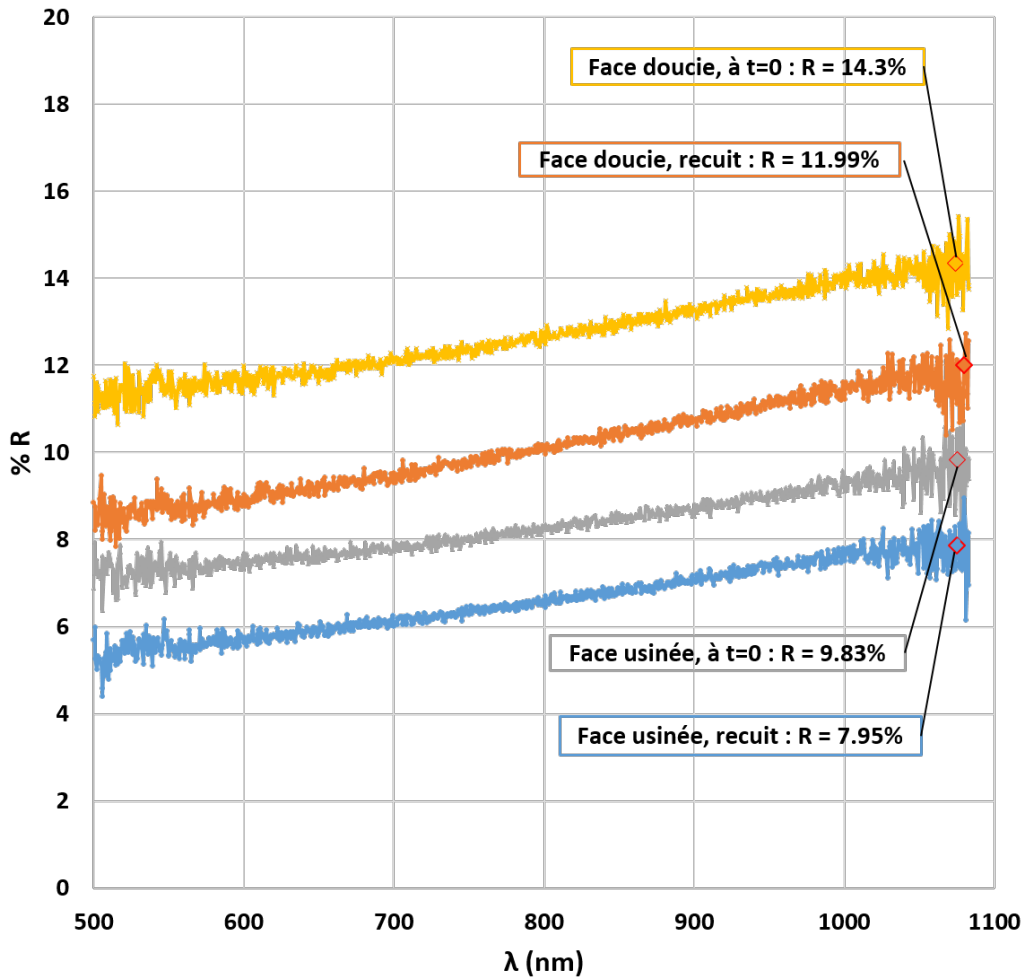


FIGURE IV.16. – Mesures spectrales de réflexion diffuse réalisées sur l'EDM-3.

relevé dans la littérature. Nous avons cependant mis en évidence avec ces mesures une différence du comportement optique des échantillons selon l'état de surface, la réflexion diffuse étant en effet fortement dépendante de la rugosité de surface [151]. A l'œil, sur nos échantillons, il était possible d'observer sur certains d'entre eux un aspect usiné. Ces faces présentaient des traces de rayures dues aux machines de découpe pour mettre en forme la pièce. Ainsi, nous faisons la distinction entre les faces que nous appellerons : "faces usinées" avec les traces de rayures et les "faces doucies" (qui subi une étape supplémentaire lors de la fabrication). De plus, lors des expériences de chauffe nous avons constaté, un changement de l'aspect de surface du matériau, ainsi nous avons effectué pour chaque face deux mesures de l'absorption entre 500 et 1083 nm, une mesure appelée "t=0" qui correspond à son état initial et une mesure appelée "recuit" qui correspond à son état après avoir subi une ou plusieurs chaufes.

La figure IV.16, nous pouvons observer la réflexion du graphite EDM-3 en fonction

de la longueur d'onde. Ces mesures illustrent la différence de comportement et d'aspect des deux faces : la face doucie absorbe moins la lumière que la face usinée. Nous pouvons faire deux autres observations sur ce graphique, la première est que pour les deux faces, la réflexion initiale est plus importante que la réflexion après chauffage. Notre hypothèse est que pendant la mise sous vide puis pendant le chauffage, la surface de la pastille est nettoyée. La seconde observation est l'évolution linéaire de la réflexion en fonction de la longueur d'onde et ce pour les deux faces avant et après chauffage. Nous n'avons pas trouvé de telle mention de l'évolution de la réflexion de l'EDM-3 dans la littérature.

Lors des expériences que nous présenterons sur le graphite EDM-3, nous travaillerons sur la face usinée d'un échantillon ayant déjà subi une mise sous vide et une chauffe, avec à 1080 nm, une valeur de réflexion de 0,098.

C.2. Calibration sur le graphite EDM-3

Une phase préalable de calibration est nécessaire avant toute campagne d'expérience, les propriétés d'émissivité du graphite étant fortement dépendantes de l'état de surface et du type de graphite comme nous l'avons vu précédemment. Une première étape a été effectuée avec un échantillon spécifiquement dédié à la calibration (échantillon muni de thermocouples) pour les basses températures ($<1200^{\circ}\text{C}$) et une deuxième étape a été effectuée pour les hautes températures sur des échantillons non instrumentés (calibration par pyrométrie multicanal). Nous décrivons ici ces 2 étapes de calibration puis nous comparerons dans la dernière partie les valeurs d'émissivités obtenues à celles de la littérature.

C.2.a. Calibration $<1200^{\circ}\text{C}$

Un échantillon instrumenté d'EDM-3 nous a été fourni par le CEA CESTA et son état de surface est similaire aux autres échantillons étudiés. Il est équipé de 2 thermocouples de type K insérés dans des perçages et scellés à l'aide d'une colle graphite haute température (photo IV.18).

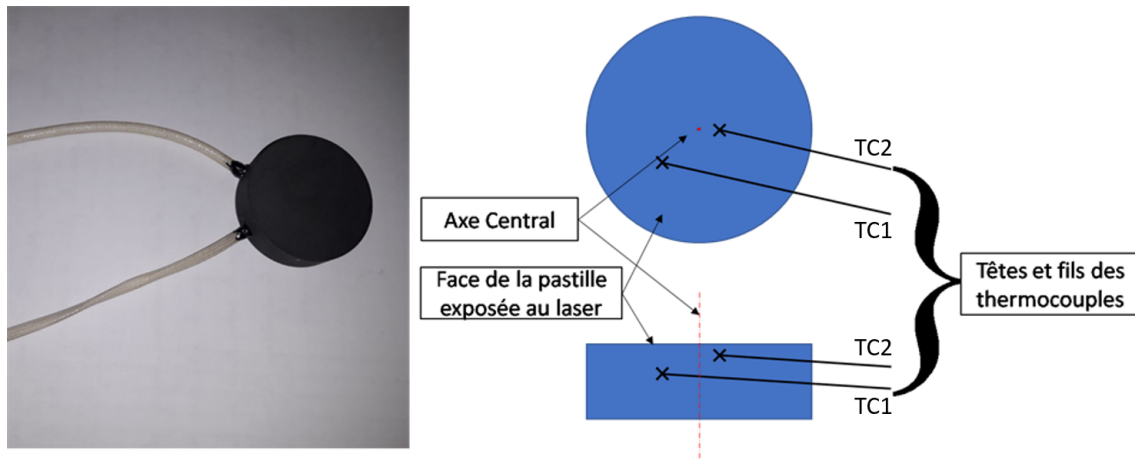


FIGURE IV.18. – Photo et schéma de l'échantillon instrumenté utilisé pour la phase de calibration

Les positions exactes des thermocouples dans l'échantillon ont été obtenues à l'aide de radiographie X et sont représentées sur le schéma IV.18

- le premier (TC1) est excentré de 11 mm et se situe à une profondeur de 3 mm
- le second (TC2), le plus proche de la surface est excentré de l'axe central de 1,3 mm et se trouve à 1,1 mm de profondeur

Ces positions seront celles où pour la suite nous calculerons les élévations de température à l'aide du modèle lors des comparaisons simulations/expériences.

La configuration utilisée lors du travail sur cet échantillon est présentée sur la figure IV.19. Le laser est en incidence normale au centre de la face exposée, en

faisceau collimaté (diamètre 13 mm).

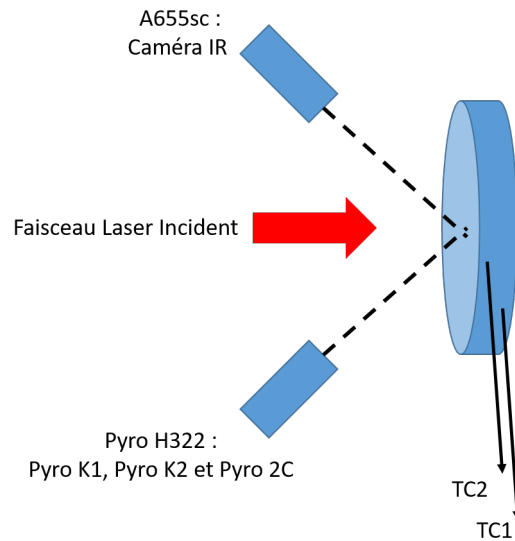


FIGURE IV.19. – Configuration utilisée sur l'échantillon instrumenté

Le signal issu des 2 thermocouples est acquis par le PC (utilisation des passages TC de la chambre et d'un boîtier Pico Technology TC-08). Le pyromètre et la caméra IR sont placés avec une incidence de 45° de façon symétrique et pointent tous les deux la zone centrale. En ce qui concerne le pyromètre bichromatique, trois valeurs sont relevées simultanément, avec un pas de $100 \mu\text{s}$:

- "Pyro K1" : la température via l'émission reçue sur le canal C1 avec l'émissivité paramétrée ε_1 ,
- "Pyro K2" : la température via l'émission reçue sur le canal C2 avec l'émissivité paramétrée ε_2 ,
- "Pyro 2C" : la température avec le rapport d'émissivité de C2 sur C1 ($\varepsilon_{Pyro\ C2}/\varepsilon_{Pyro\ C1}$)

"Pyro K1", "Pyro K2" et "Pyro 2C" sont des mesures provenant d'un seul et même pyromètre (H322), cette dénomination sera utilisée sur les graphiques présentés. Les valeurs de la caméra thermique seront légendées par "Caméra IR", et "TC1", "TC2" seront utilisées pour désigner les valeurs issues des thermocouples.

L'utilisation simultanée de ces 3 canaux permet de régler les émissivités puisqu'il n'existe théoriquement qu'un seul couple ($\varepsilon_2, \varepsilon_1$) qui permet d'égaliser les températures obtenues sur les 3 canaux. Pour cela, on chauffe à puissance constante la pastille de test pour obtenir une température stabilisée. Une fois ce palier atteint, on modifie les paramètres d'émissivité pour que "Pyro K1" et "Pyro K2" soient égaux, ce qui permet de connaître le rapport d'émissivité $\varepsilon_2/\varepsilon_1$. Une fois ce rapport connu, et à partir de "Pyro 2C" on peut à nouveau modifier, si nécessaire ε_2 et ε_1 , pour avoir $\text{Pyro 2C} = \text{Pyro K1} = \text{Pyro K2}$. Un programme Matlab a été développé pour traiter les données à partir de paramètres physiques (loi de Planck) et obtenir

les valeurs ($\varepsilon_2, \varepsilon_1$) a posteriori et recalculer les températures. Nous le décrivons en annexe D.

En ce qui concerne la caméra thermique, deux paramètres sont à déterminer : la transmission du hublot en Germanium (dont la procédure de calibration a été présentée dans le chapitre précédent) et l'émissivité dans la bande utile 8-13 μm . Cette dernière est ajustée, par palier de température, pour obtenir une température identique à celle donnée par le pyromètre.

Différentes séries de mesures ont été effectuées, dont les paramètres sont donnés dans le tableau II.

Temps de chauffe (s)	Température atteinte ($^{\circ}\text{C}$)	Puissance (W)
600	650	90
600	800	150
600	1300	300

TABLE II. – Tableau récapitulatif des chauffes réalisées

Les résultats d'une chauffe de 150W sur l'échantillon instrumenté pendant 10 minutes sont donnés en exemple sur la Figure IV.20. Les données des différents appareils sont cohérentes entre elles et les différentes mesures de température (3 canaux pyromètre et caméra IR) sont identiques (Figure IV.21).

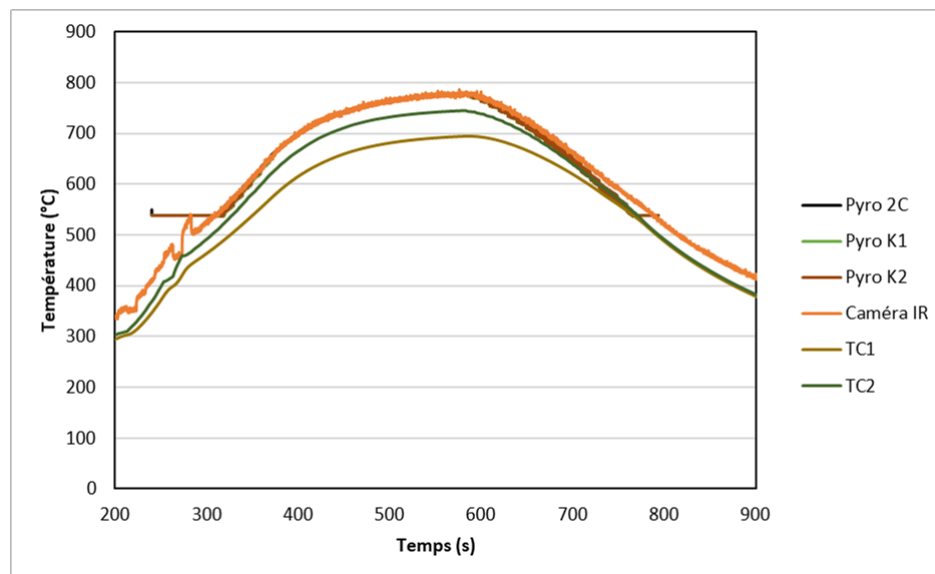


FIGURE IV.20. – Mesures issues d'une montée progressive jusqu'à 150 W sur l'échantillon de calibration

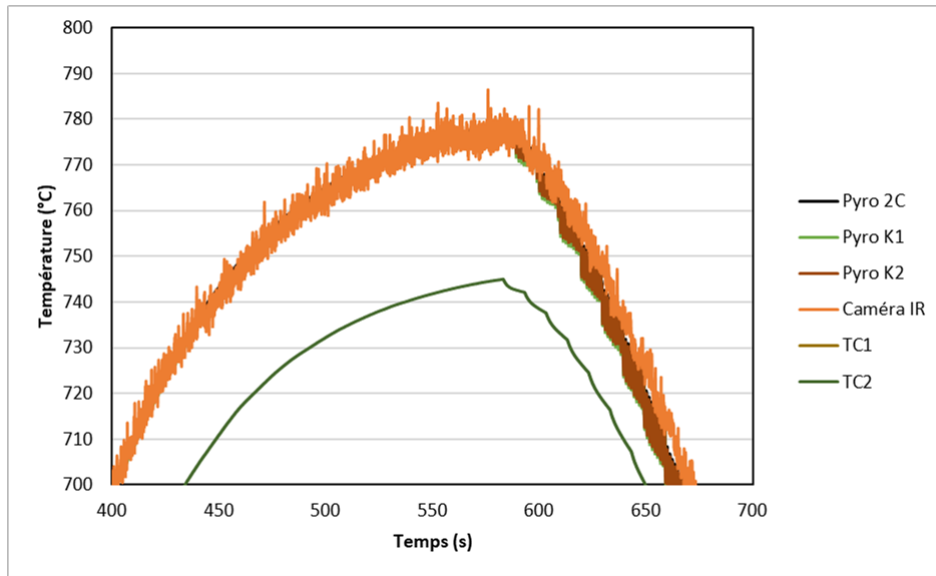


FIGURE IV.21. – Zoom du graphique précédent. Les 4 premières courbes sont superposées.

Afin de vérifier la validité du modèle numérique, nous faisons une comparaison des données expérimentales aux résultats issus des simulations dans les mêmes conditions. "SimuTC1" et "SimuTC2" correspondent aux valeurs simulées respectivement pour "TC1" et "TC2". "Simu Face Exposée" correspond aux valeurs simulées de la face exposée, ce qui dans ce montage est comparable aux valeurs du pyromètre (Pyro 2C, Pyro K1 et Pyro K2) et de la caméra thermique (Caméra IR). Nous observons une très bonne juxtaposition des données sur les figures IV.22 et IV.23.

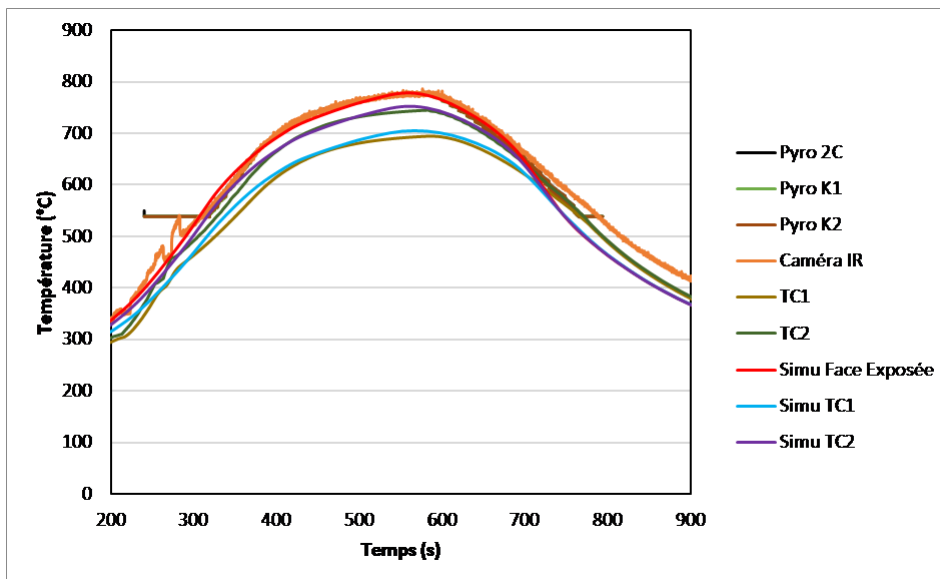


FIGURE IV.22. – Graphique comparant les résultats précédents aux simulations

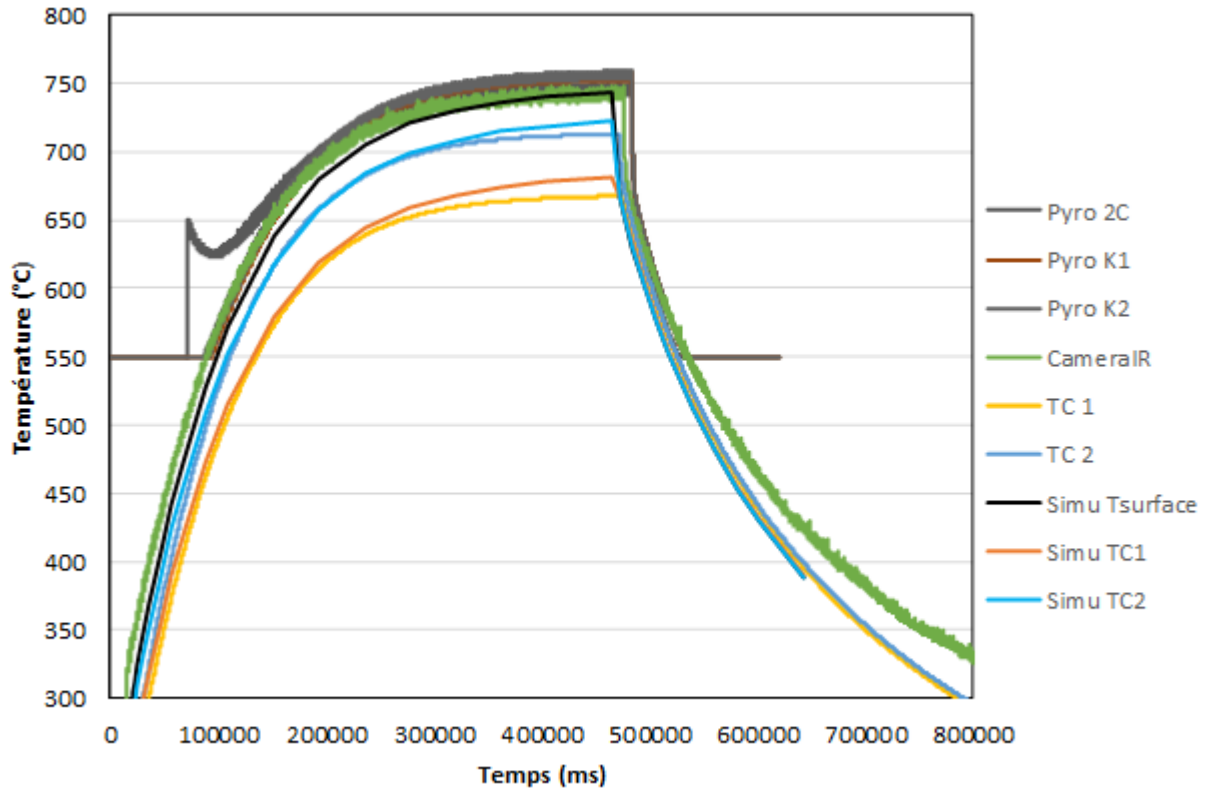


FIGURE IV.23. – Cas d’une chauffe à 120 W sur l’échantillon instrumenté, avec les valeurs expérimentales et simulées

Nous résumons dans le tableau III les valeurs obtenues pour les émissivités. L’erreur absolue sur le rapport d’émissivité dans le cas de l’utilisation de ce pyromètre (H322 : 550-1400°C) et de ce protocole est estimée à 0,002 à basse température. L’erreur sur la température correspondante est donc au maximum d’environ 3,6°C en réutilisant l’équation III.8. En prenant en compte l’erreur liée au pyromètre telle que définie par le constructeur (relative (%) + absolu (°C) : 0,5% + 1°C) alors notre incertitude générale (regroupant toutes les sources potentielles d’erreur) est inférieure à 1% de la température mesurée.

Température Atteinte (°C)	Puissance nécessaire (W)	ε_{cam}	ε_1	ε_2	$\varepsilon_2/\varepsilon_1$
650 ± 5	90	0,80	0,9005	0,900	1,020
800 ± 7	150	0,78	0,900	0,900	1,000
1300 ± 11	300	0,71	0,855	0,85	1,000

TABLE III. – Tableau récapitulatif des calibrations à basse température

C.2.b. Calibration hautes températures (>1500°C)

Ne disposant pas pendant la thèse d'échantillons instrumentés avec d'autres types de TC que le type K, nous avons travaillé pour les températures supérieures à 1500°C uniquement avec le pyromètre haute température et la caméra. Nous avons utilisé la procédure de détermination des émissivités du pyromètre décrite plus haut puis l'émissivité de la caméra a été réglée pour égaliser les températures. Nous avons effectué des paliers de température à 1500, 2000 et 2500°C. Pour 3000°C, la température étant trop importante pour être maintenue longtemps sans endommager l'échantillon et le porte-échantillon, le protocole a été réalisé sur des impulsions. Cette contrainte entraîne une incertitude plus grande sur les mesures et sur la calibration. Chaque échantillon a été soumis plusieurs fois au même protocole, pour étudier la répétabilité.

La campagne d'expérience est divisée en deux séries, en effet le faisceau tel qu'il est émis de la tête du collimateur (avec un diamètre de 13,5 mm) ne permet pas d'atteindre 3000°C à la surface de l'échantillon. Une série d'expérience a donc été réalisée avec une lentille de focalisation entre la tête du collimateur et l'échantillon (Fig.IV.24). Les résultats obtenus sur ces 2 séries sont décrits dans les tableaux IV et V.

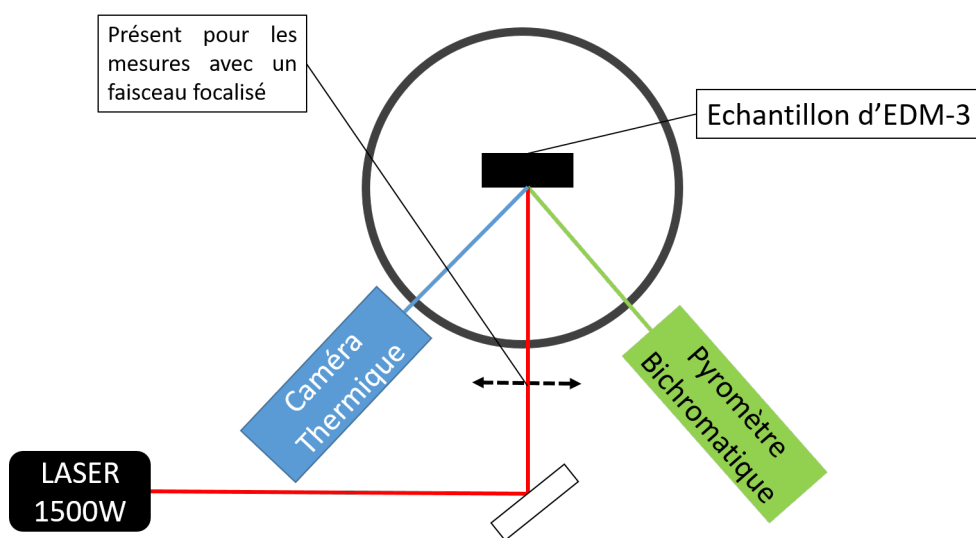


FIGURE IV.24. – Schéma de la configuration utilisée pour les calibrations

L'erreur absolue sur le rapport d'émissivité via l'utilisation de ce pyromètre (H322 : 1300-3000°C) et de ce protocole est à 0,001 à haute température. L'erreur correspondante sur la température est donc au maximum d'environ 6,1°C en réutilisant l'équation III.8. En prenant en compte l'erreur liée au pyromètre telle que définie par le constructeur (relative (%) + absolu (°K) : 0,5% + 1K) alors notre incertitude générale (regroupant toutes les sources potentielles d'erreur) est inférieure à 1% de la température mesurée.

La taille du faisceau, et la répétition des rampes thermiques (qui provoque des altérations visibles à la surface de l'échantillon) n'ont pas modifié la mesure pyrométrique avec des valeurs très proches ($<1\%$ d'écart sur la semaine d'expérience). Le tableau VI résume les valeurs obtenues.

Série	Température Atteinte (°C)	Puissance Nécessaire (W)	ε_{cam}	ε_1	ε_2	$\varepsilon_2/\varepsilon_1$
1	1500 ± 10	365	0,71	0,910	0,905	0,99
1	2000 ± 14	650	0,68	0,910	0,900	0,988
1	2500 ± 19	1025	0,68	0,910	0,9001	0,988

TABLE IV. – Résultats de calibration pour la première série d'expériences (Faisceau de 13.5 mm)

Série	Température Atteinte (°C)	Puissance Nécessaire (W)	ε_{cam}	ε_1	ε_2	$\varepsilon_2/\varepsilon_1$
2	1500 ± 10	285	0,68	0,91	0,9	0,988
2	2000 ± 14	510	0,68	0,907	0,903	0,996
2	2500 ± 19	770	0,68	0,91	0,905	0,99
2	2500 ± 19	770	0,68	0,912	0,904	0,988
2	3000 ± 23	1095	0,68	0,912	0,904	0,988

TABLE V. – Résultats de calibration pour la seconde série d'expériences (Faisceau de 6 mm)

Série	Température Atteinte (°C)	ε_{cam}	ε_1	ε_2	$\varepsilon_2/\varepsilon_1$
1	1500 ± 10	0,71	0,91	0,905	0,99
1	2000 ± 14	0,68	0,91	0,9	0,988
1	2500 ± 19	0,68	0,91	0,9	0,988
2	1500 ± 10	0,68	0,91	0,9	0,988
2	2000 ± 14	0,68	0,907	0,903	0,996
2	2500 ± 19	0,68	0,91	0,905	0,99
2	2500 ± 19	0,68	0,912	0,904	0,988
2	3000 ± 23	0,68	0,912	0,904	0,988

TABLE VI. – Tableau récapitulatif de la campagne de calibration

C.2.c. Comparaison avec la bibliographie

Nous comparons sur la figure IV.25 les valeurs d'émissivité obtenues pour les 2 bandes spectrales du pyromètre haute température, et pour les bandes du pyromètre

basse température. Les valeurs atteintes sont assez proches de celles obtenues par Neuer et Fu à des longueurs d'onde similaires (1,5 μm). Nous n'observons pas de dépendance significative avec la température. Une légère différence est observée entre les 2 longueurs d'onde (1,4 μm et 1,64 μm), qui ne va pas dans le sens majoritairement observé dans la bibliographie : diminution de l'émissivité avec la longueur d'onde. Notons cependant que cette évolution a été reportée par Fu. et al comme évoqué dans la partie bibliographique. A basse température (500-800°C), nous avons déterminé l'émissivité à 0,9 sur une gamme spectrale de 1,4 à 1,8 μm . Si la littérature ne propose pas de comparaison pour 800°C ou pour cette gamme spectrale précise, il est toutefois possible d'obtenir des valeurs d'émissivité à 500°C pour deux longueurs d'onde proches (1,4 et 1,6 μm). Ces valeurs rapportées par Fu, encadrent nos valeurs expérimentales. De plus à 1500°C, nos valeurs expérimentales semblent cohérentes avec la celles obtenues par Neuer. Ainsi nos valeurs et donc notre protocole semblent cohérents en comparaison à la littérature. Ce protocole de calibration sera réutilisé par la suite sur l' UO_2 .

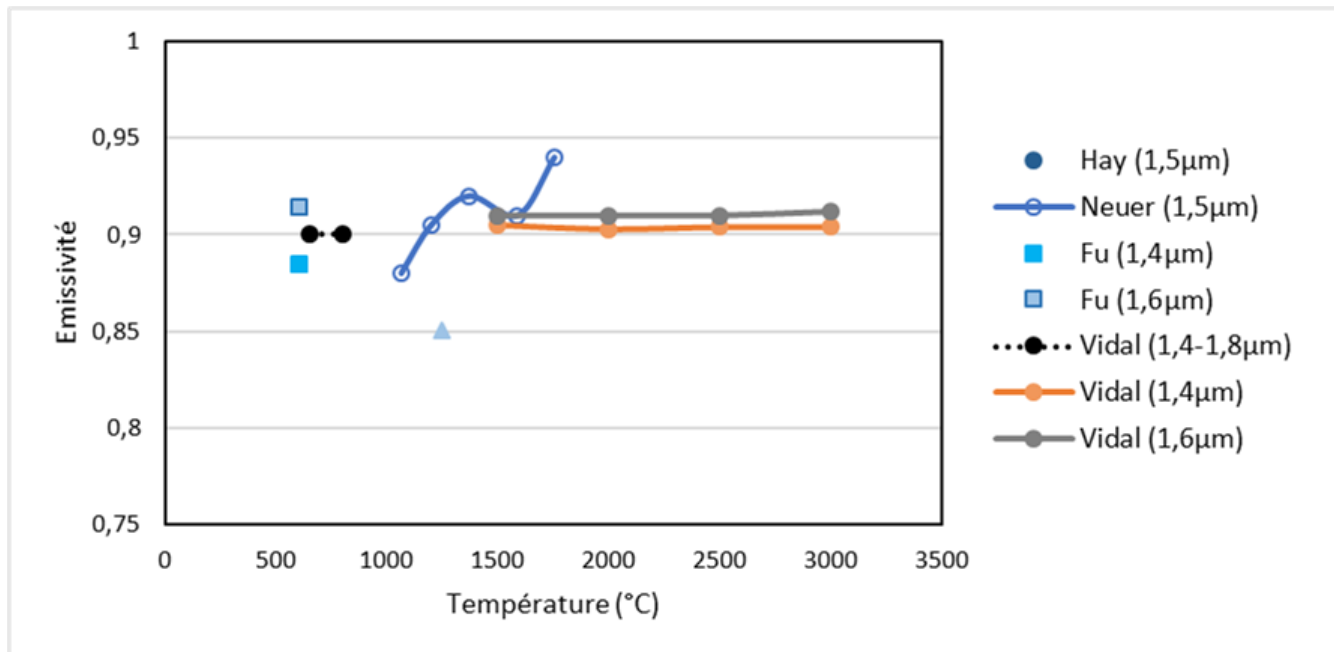


FIGURE IV.25. – Comparaison des valeurs d'émissivité obtenues à la celles de la littérature

C.3. Premières expériences de chauffe à très haute température

La première série d'expérience (échantillon IF1-EDM3) avait pour objectif de déterminer les configurations adéquates pour atteindre des températures allant jusqu'à 3000°C sur des zones millimétriques. Pour cela, la plateforme expérimentale

était dans la configuration illustrée figure IV.26, avec un faisceau focalisé de 7 mm de diamètre. Deux pyromètres et une caméra thermique ont été utilisés pour mesurer de façon simultanée les températures en face/avant et arrière, ce qui présente un intérêt pour la comparaison aux simulations. On peut également trouver sur ce schéma la présence d'un laser impulsionnel (noté "Laser ns"), avec lequel nous avons testé la possibilité d'effectuer des chocs laser à haute température (non détaillé dans la suite de ce manuscrit, et faisant part de la collaboration avec le CEA-DAM).

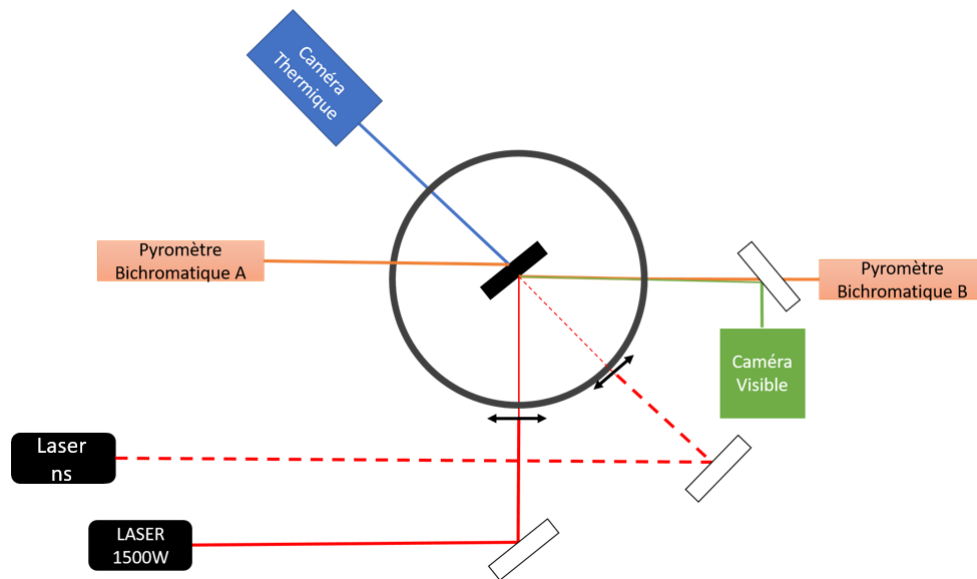


FIGURE IV.26. – Configuration pour un faisceau focalisé et des mesures caméra en face arrière

Le graphique IV.27 présente une comparaison de chauffe effectuées à pleine puissance du laser, 1500 W, pendant 10 s, mais avec des températures initiales différentes, obtenues en préchauffant l'échantillon à puissance laser modérée.

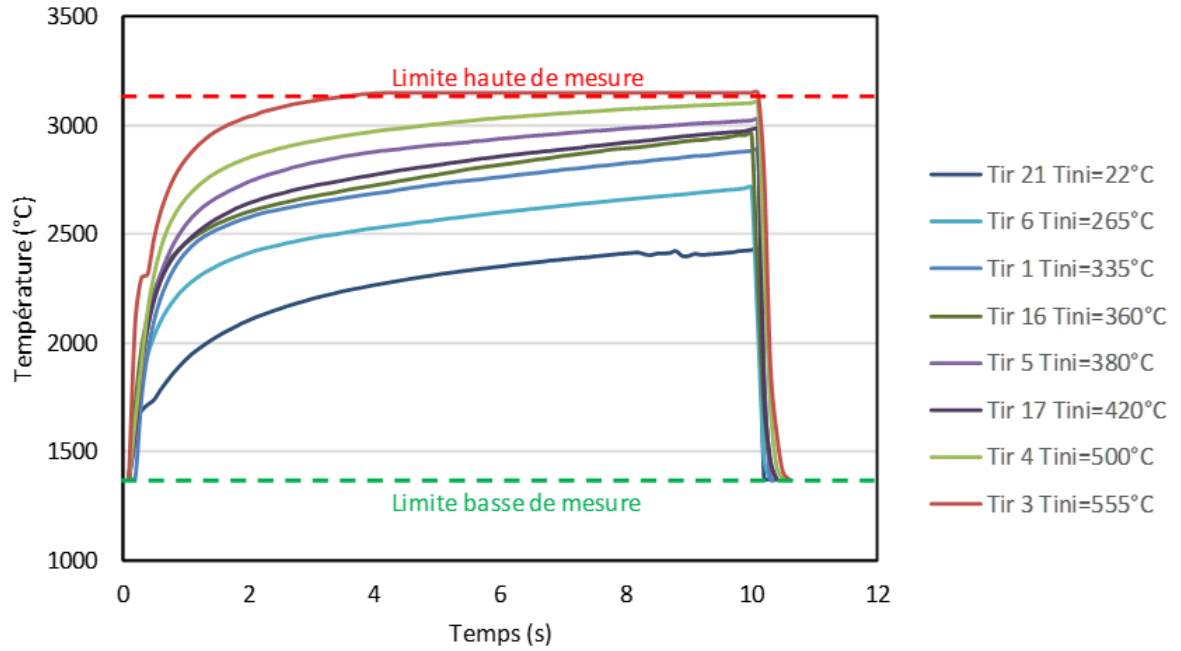


FIGURE IV.27. – Comparaison des températures maximales atteintes en fonction de la température initiale pré-tir (T_{ini}). Faisceau de 7mm, Puissance 1500W.

Pour le site ayant subi le préchauffage le plus haut (tir 3, 555°C de température initiale), une saturation du pyromètre est observée : la température dépasse 3200°C après 4 s. Nous résumons dans le tableau VII les valeurs finales de température après 10 s de chauffe à 1500 W, et l’élévation de température obtenue.

N° Tir	Tir 21	Tir 15	Tir 9	Tir 6	Tir 1	Tir 17	Tir 5	Tir 10	Tir 8	Tir 16	Tir 4	Tir 3
T_{ini} (°C)	22	225	235	265	335	360	380	380	395	420	500	555
T_{max} (°C)	2427	2874	2855	2714	2887	2980	3023	2853	2970	2961	3101	3220+
$T_{max} - T_{ini}$	2405	2649	2620	2449	2552	2620	2643	2473	2575	2540	2601	2665+

TABLE VII. – Tableau récapitulatif des températures obtenues

L’élévation de température ($T_{max} - T_{ini}$) est comprise dans la gamme 2400°C-2650°C. Ces expériences témoignent du fait que dans nos conditions expérimentales il n’est pas possible d’atteindre les 3000°C sans un préchauffage minimal de 500°C, avec cette taille de faisceau sur un échantillon massif. Les dimensions de cet échantillon étaient en effet de 80x30x15 (Lxlxh en mm). Pour la suite des travaux nous avons choisi de travailler sur des échantillons de type disques de 30x5 (DiamètrexEpaisseur en mm).

Ces séries d’expériences ont permis d’utiliser le laser à sa puissance maximale, ainsi que l’ensemble de la plateforme en condition réelle. Nous avons testé l’instrumentation jusqu’à ses limites de mesures (2000°C pour la caméra A655sc et 3000°C

pour le pyromètre H322). Elles ont donc permis de montrer que de très hautes températures pouvaient être atteintes et maîtrisées sur notre installation, ce qui était une étape importante.

C.4. Chauffes à puissance constante

Une deuxième campagne d'expérience a été effectuée avec pour objectif d'atteindre des paliers de température stables (autour de 1500°C, 2000°C, 2500°C, puis 3000°C) pour d'une part effectuer les réglages des instruments (émissivités à différentes températures) avant les chauffes régulées (décrites plus loin) et d'autre part acquérir des résultats expérimentaux pour la comparaison aux simulations. Ces expériences ont mis en jeu les échantillons de type disques IF2-EDM3-1 à 4. Les expériences se sont caractérisées par une chauffe laser de 25 à 40 s jusqu'à une température cible (1500, 2000, 2500 et 3000°C), suivie d'un palier d'une durée variable (30, 15, 0 s). La configuration expérimentale était la même que pour les séries d'expériences précédentes. Une photo de la configuration est donnée figure IV.28.

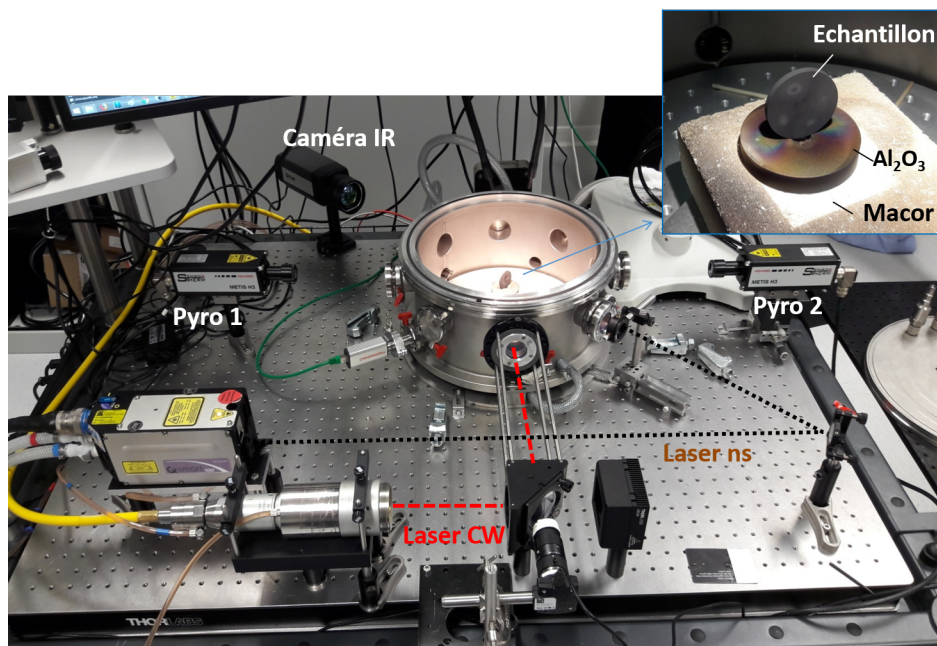


FIGURE IV.28. – Montage expérimental pour pour des chauffes couplées à des tirs nanosecondes, pour un faisceau collimaté et une mesure caméra en face arrière

Les résultats sont regroupés dans le tableau VIII et présentés figure IV.29 à figure IV.31 pour le cas du faisceau collimaté et figure IV.32 à figure IV.35 pour le cas du faisceau focalisé. Sur les figures IV.29 et IV.30, les valeurs mesurées par la caméra et le pyromètre se superposent, témoignant de la fiabilité de la calibration réalisée en amont. Sur les expériences correspondant aux figures IV.32 à IV.35, la

caméra se situait en face arrière pour acquérir des données utiles aux comparaisons entre expériences et simulations.

Type de faisceau	Puissance (W)	Température maximale (°C)	Position du pyromètre	Position de la caméra thermique
collimaté	375	1500	Face exposée	Face exposée
collimaté	675	2000	Face exposée	Face exposée
collimaté	1050	2500	Face exposée	Face exposée
focalisé	300	1500	Face exposée	Face opposée
focalisé	525	2000	Face exposée	Face opposée
focalisé	795	2500	Face exposée	Face opposée
focalisé	1125	3000	Face exposée	Face opposée

TABLE VIII. – Tableau récapitulatif des chauffes de la série d'expériences II

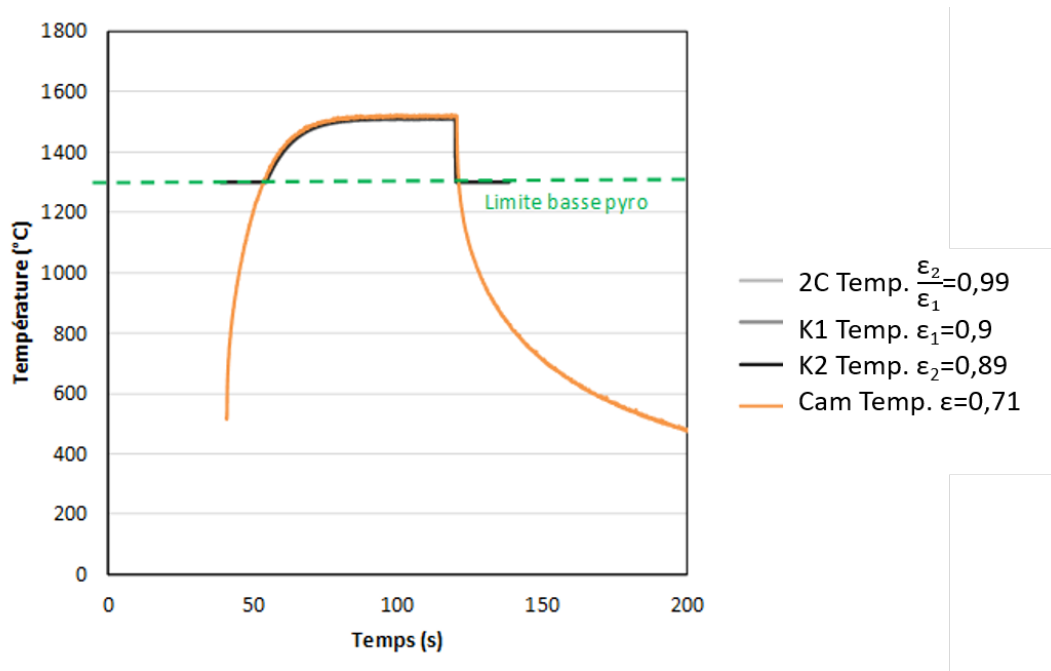


FIGURE IV.29. – Chauffage sur l'échantillon CAL-EDM3-2 à 375 W (mesures face avant)

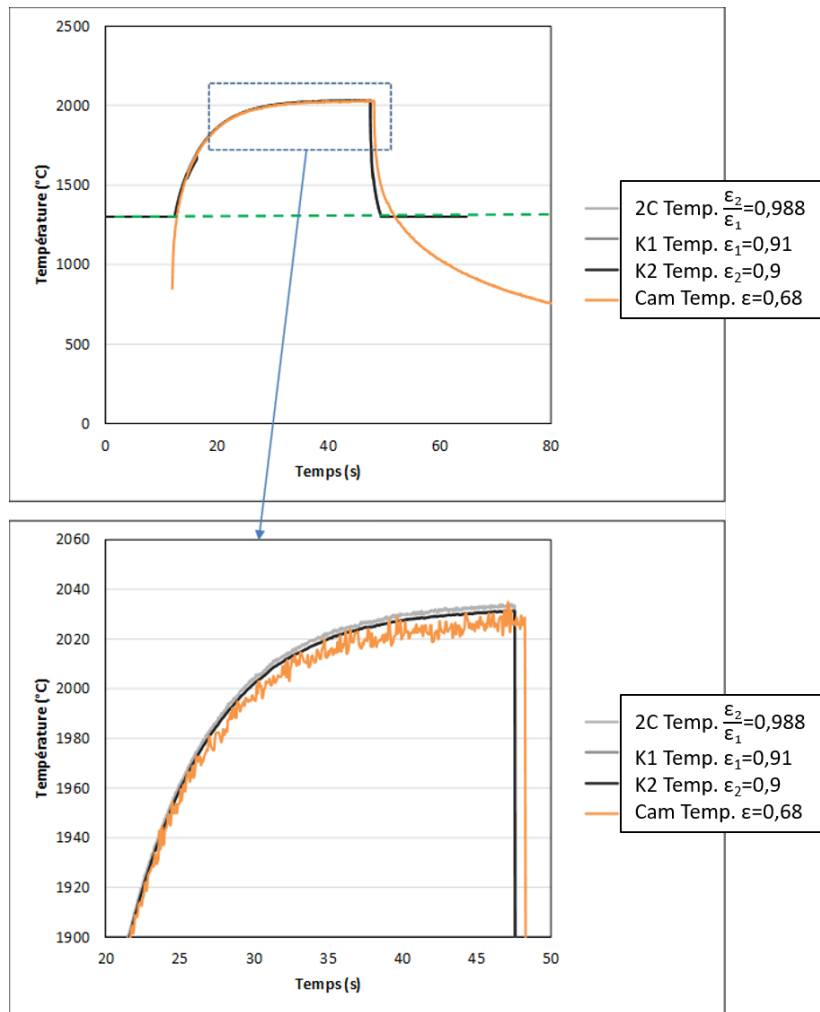


FIGURE IV.30. – Chauffage sur l'échantillon CAL-EDM3-2 à 675 W (mesures face avant)

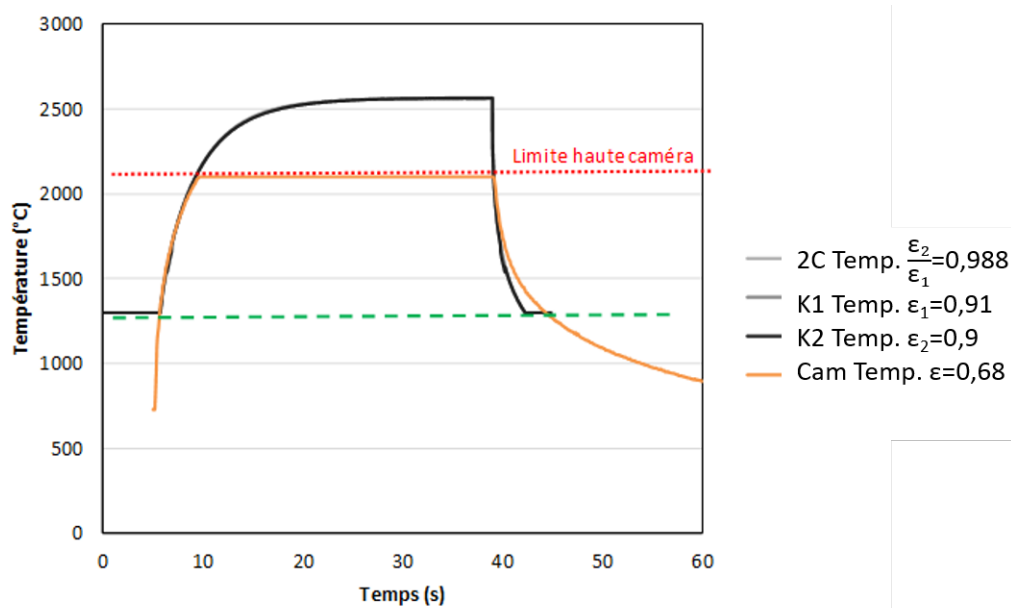


FIGURE IV.31. – Chauffage sur l'échantillon CAL-EDM3-2 à 1050 W (mesures face avant)

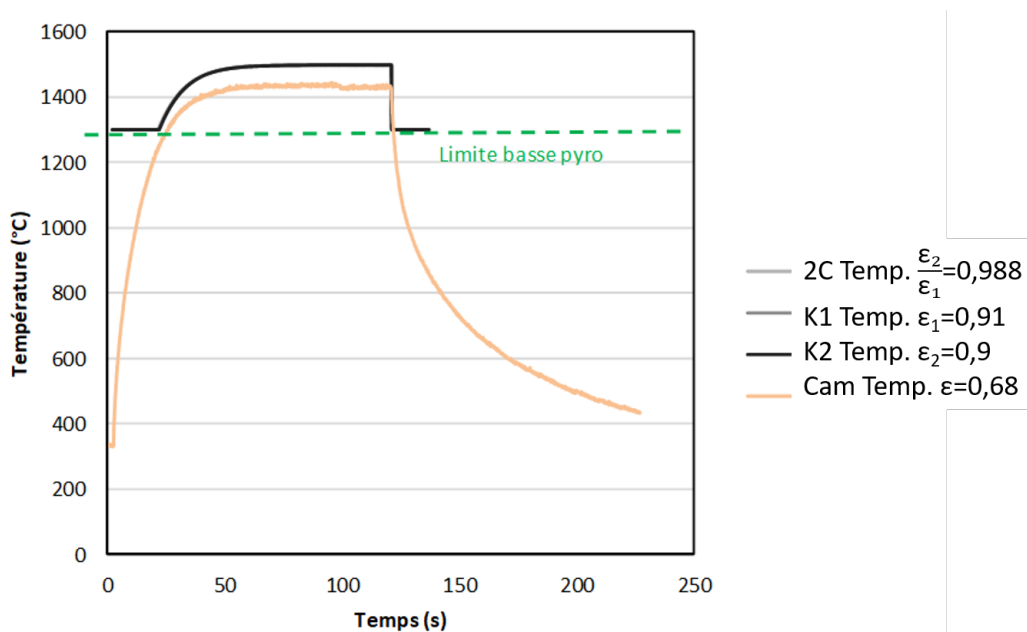


FIGURE IV.32. – Chauffage sur l'échantillon CAL-EDM3-2 à 300 W. Le pyromètre vise le point d'impact sur la face avant, la caméra relève la température maximale sur la face arrière

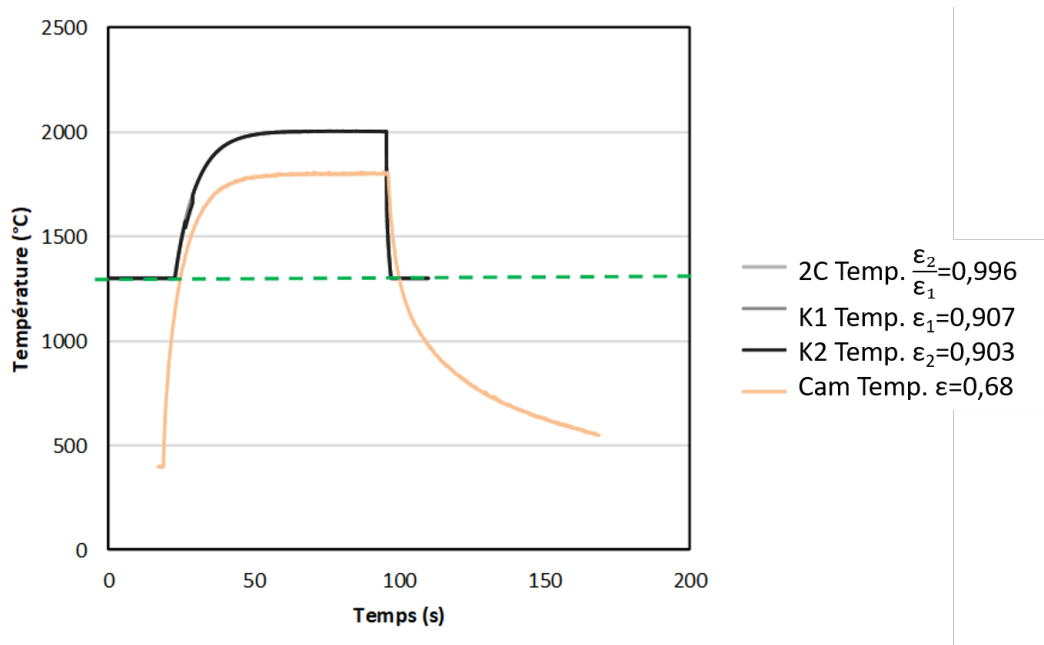


FIGURE IV.33. – Chauffe sur l'échantillon CAL-EDM3-2 à 525 W. Le pyromètre vise le point d'impact sur la face avant, la caméra relève la température maximale sur la face arrière

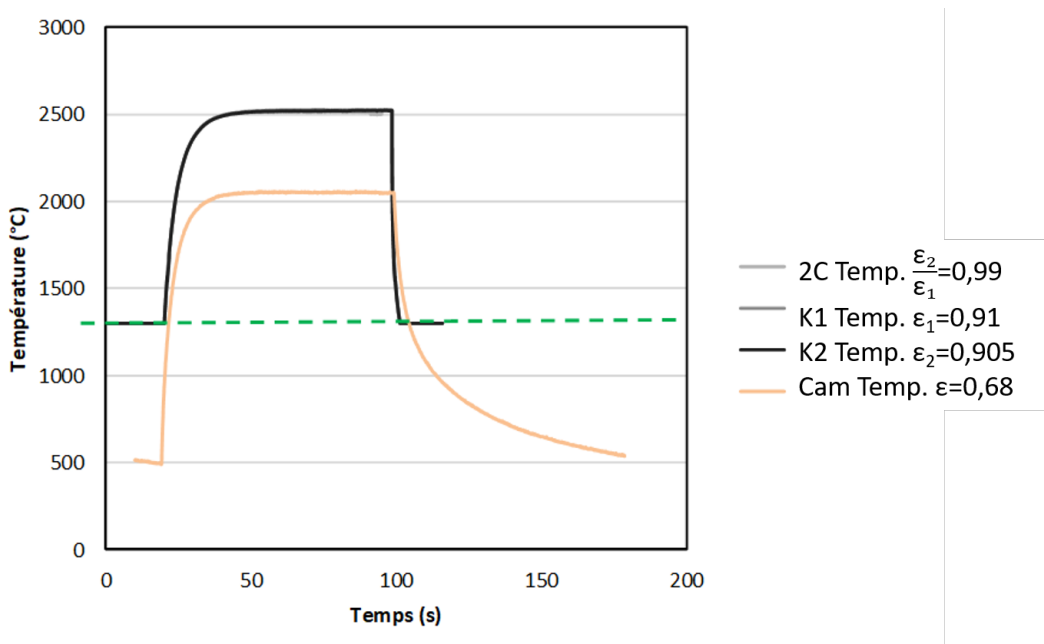


FIGURE IV.34. – Chauffe sur l'échantillon CAL-EDM3-2 à 795 W. Le pyromètre vise le point d'impact sur la face avant, la caméra relève la température maximale sur la face arrière

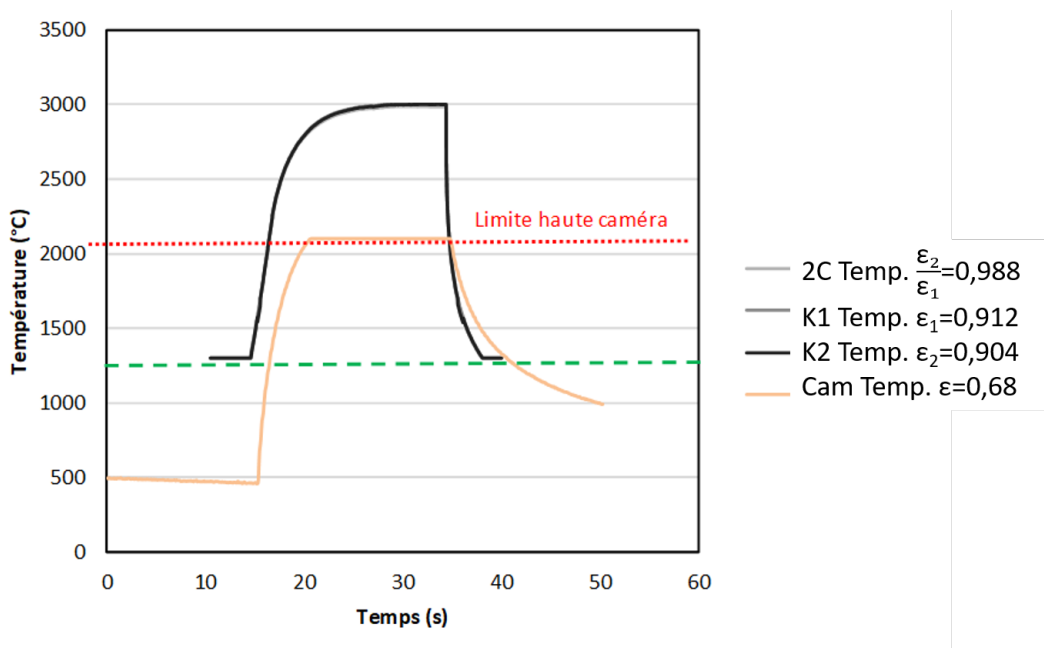


FIGURE IV.35. – Chauffe sur l'échantillon CAL-EDM3-2 à 1125 W. Le pyromètre vise le point d'impact sur la face avant, la caméra relève la température maximale sur la face arrière

C.5. Chauffes régulées en température

Cette dernière série d'expérience a été réalisée en utilisant le régulateur PID (détaillé dans la section C.1 avec un exemple III.19). Nous avons cherché à effectuer des montées en température linéaires jusqu'à une température cible (1500, 2000, 2500 ou 3000°C), température à laquelle un tir du laser de choc est déclenché de façon automatique. Le montage est similaire à la série d'expérience précédente. Les rampes ont été démarrées sans pré-chauffe. Lors de ces expériences nous enregistrons les valeurs de puissance laser (pilotées par le régulateur), les températures du pyromètre (contrôlant le PID et donc mesurées en face avant) et les valeurs, en face arrière, mesurées par la caméra IR. Les intérêts de cette campagne pour la thèse étaient d'une part de pouvoir récupérer directement les valeurs de puissances envoyées en fonction du temps par le système PID pour pouvoir les injecter dans le modèle numérique, et d'autre part de tester les capacités de l'expérience en terme de rampe de montée.

Nous présentons figure IV.36 l'exemple d'une rampe linéaire jusqu'à 2000°C, sans préchauffe, en 60 secondes. Cette dernière illustre bien la maîtrise de la rampe de montée. Lors des simulations numériques, la courbe orange du graphique sera ensuite intégrée dans COMSOL comme fonction de puissance laser au cours du temps.

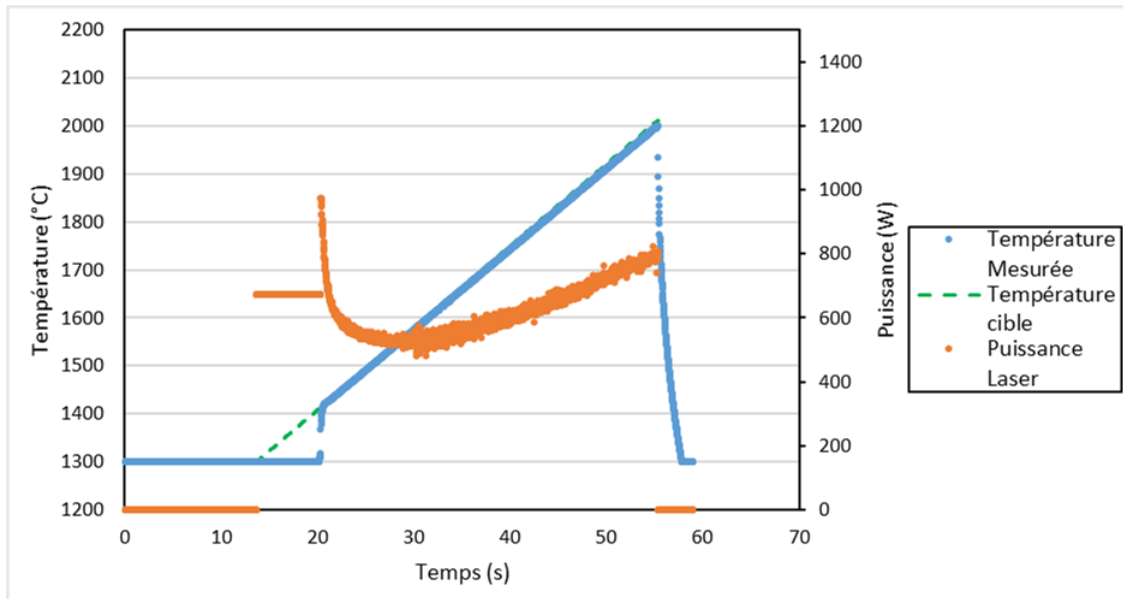


FIGURE IV.36. – Température mesurée (courbe bleue) et programmée (courbe verte) d’une chauffe linéaire. L’évolution de la puissance émise par le laser est reportée sur la courbe orange (échelle de droite)

D. Confrontation Expérimentation/Simulation

D.1. Chauffes à puissance constante

Les valeurs expérimentales sont issues de la seconde série d’expériences. Nous présentons dans les figures ci-après un comparatif des températures mesurées¹ et calculées, à l’aide du modèle décrit, dans différentes conditions expérimentales et pour différentes géométries d’échantillons. De la figure IV.37 à IV.40, nous observons une très bonne cohérence entre les valeurs expérimentales et numériques. Tous les calculs sont effectués avec les mêmes paramètres d’entrée et sans données d’ajustement (paramètres matériaux décrits plus hauts et paramètres faisceau mesurés). Le modèle s’avère robuste et reproduit bien les observations expérimentales. Des progrès sont cependant possibles sur la définition des paramètres des matériaux à haute température (>2000°C) et sur la précision des valeurs expérimentales d’entrée (puissance, taille de faisceau) pour aboutir à une description numérique de l’interaction laser/graphite plus précise.

1. Sur la figure IV.40, la caméra sature à 2000°C, malgré son positionnement en face arrière.

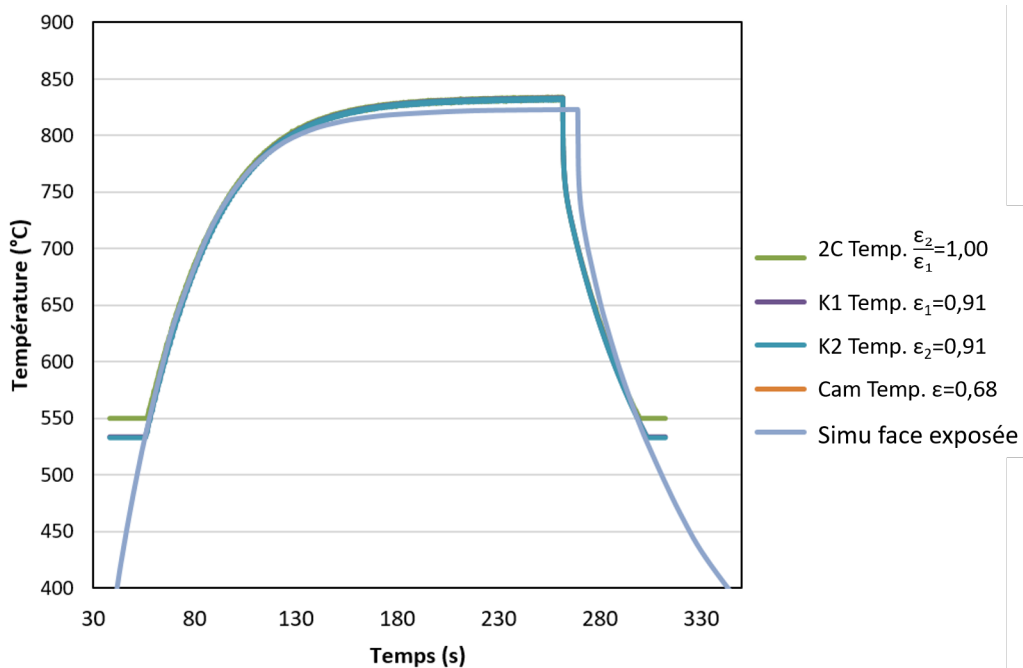


FIGURE IV.37. – Comparaison simulation/expérience pour le cas d’une chauffe sur l’échantillon CAL-EDM3-1 à 120 W. Faisceau 13,5 mm à 0°.

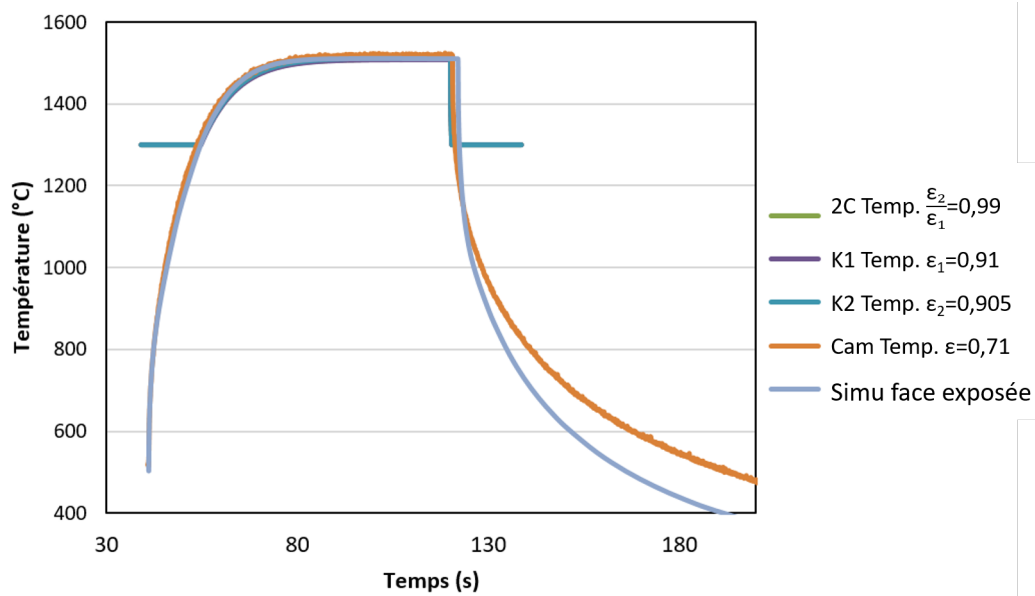


FIGURE IV.38. – Comparaison simulation/expérience pour le cas d’une chauffe sur l’échantillon IF-2 EDM3-1 à 300 W. Faisceau 13,5 mm à 0°.

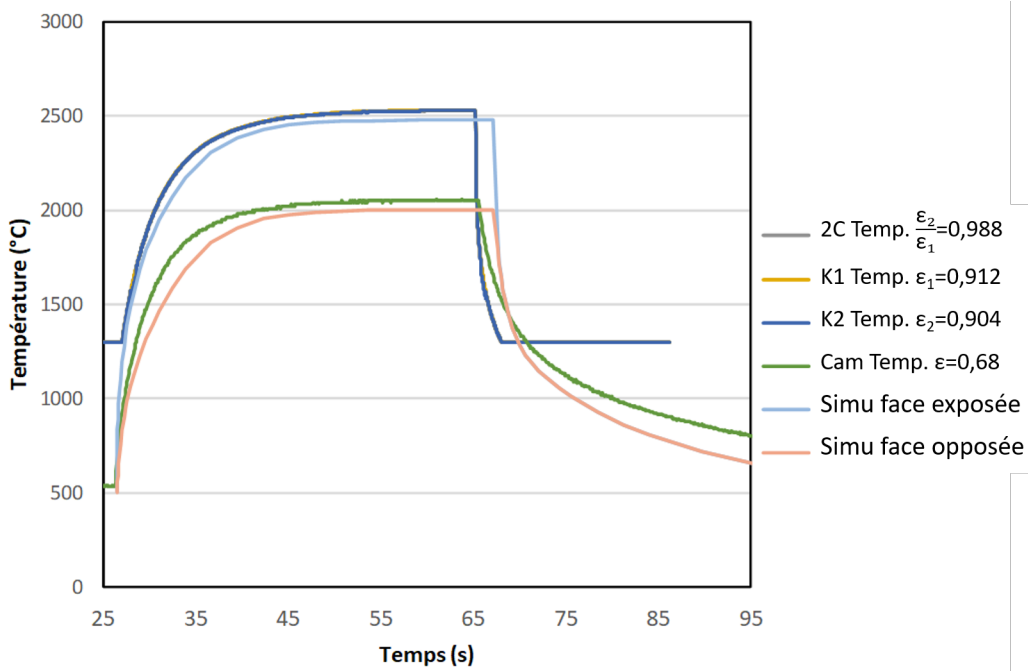


FIGURE IV.39. – Comparaison simulation/expérience pour le cas d’une chauffe sur l’échantillon IF-2 EDM3-3 à 795 W. Faisceau 7 mm à 45°.

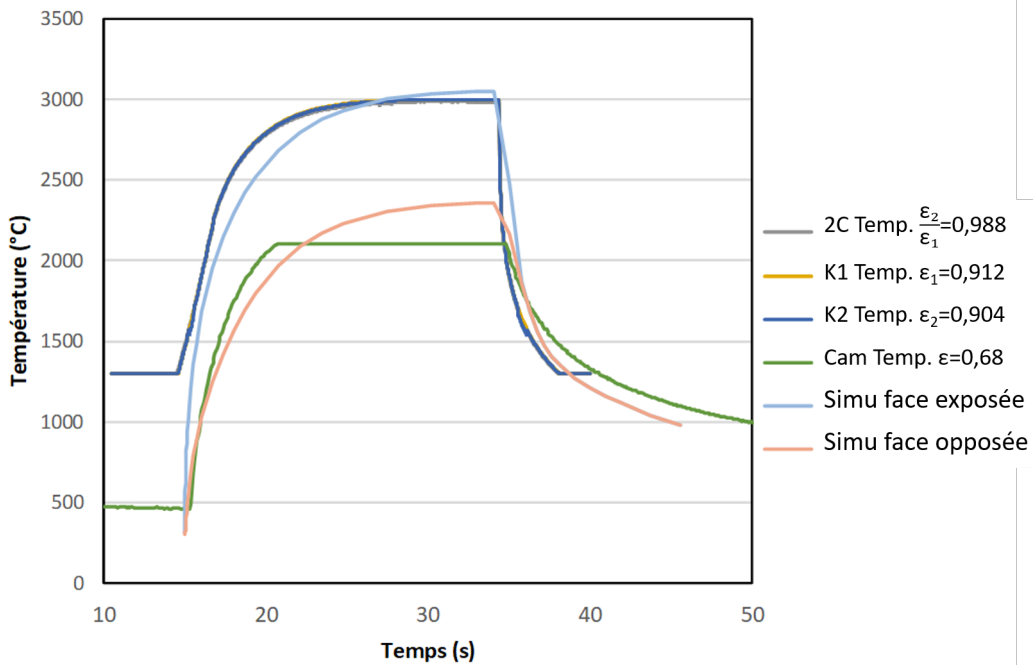


FIGURE IV.40. – Comparaison simulation/expérience pour le cas d’une chauffe sur l’échantillon IF-2 EDM3-4 à 1200 W. Faisceau 7 mm à 45°.

D.2. Chauffes régulées en température

Lors de chauffes contrôlées, les puissances laser effectivement appliquées peuvent être extraites a posteriori. A partir de ce fichier des puissances réelles il est possible à l'aide du modèle de simuler entièrement la chauffe et de comparer les résultats théoriques aux valeurs de température mesurées. Ce travail a été effectué pour différents cas (1500°C figure IV.41 et 2500°C figure IV.42, sont par exemple reportés), avec des mesures et des calculs en face avant et arrière de l'échantillon. La puissance de chauffe est constante jusqu'à la limite basse du pyromètre, il s'ensuit une chauffe linéaire jusqu'à la température ciblée. Nous observons à nouveau la robustesse du modèle avec de bonnes correspondances simulation / expérience.

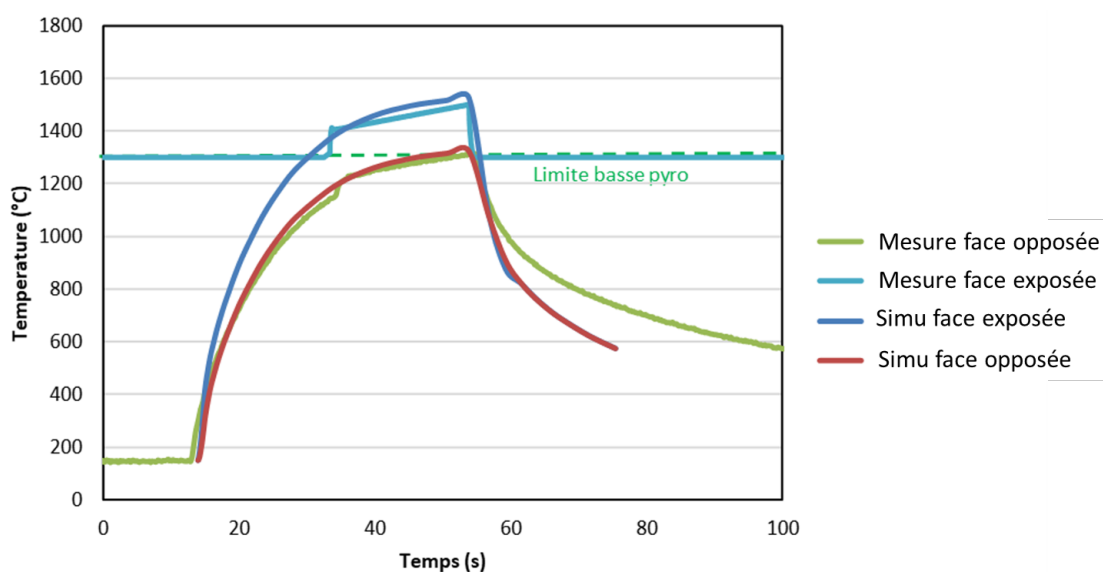


FIGURE IV.41. – Comparaison simulation/expérience pour le cas d'une chauffe linéaire jusqu'à 1500°C

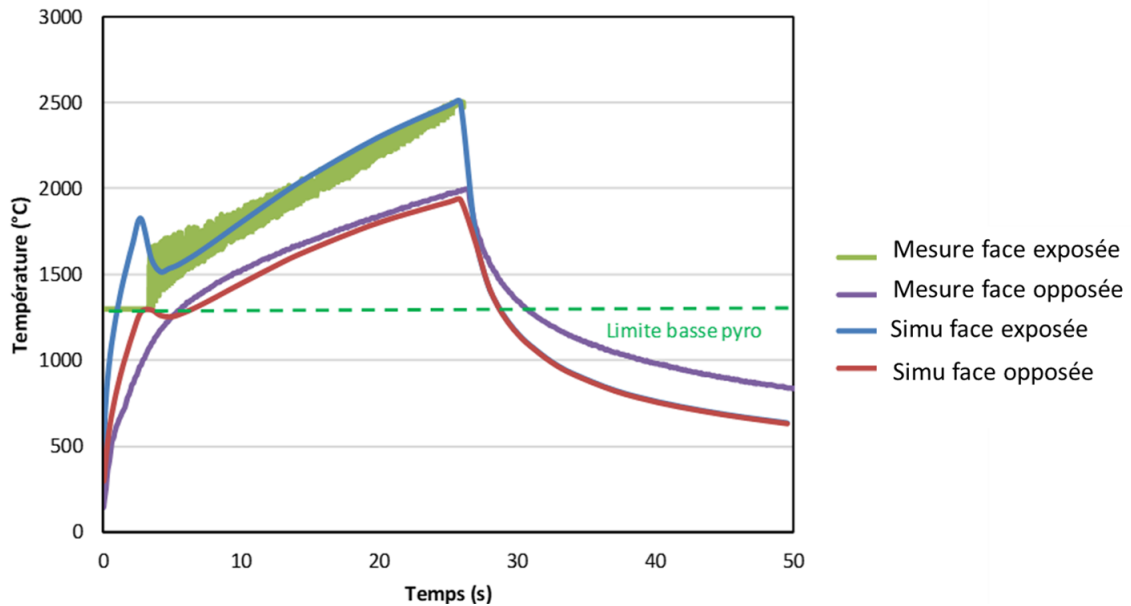


FIGURE IV.42. – Comparaison simulation/expérience pour le cas d’une chauffe linéaire jusqu’à 2500°C

E. Conclusion

. Pour tester les différents protocoles de calibration, de régulation et le modèle numérique présenté au chapitre précédent, des campagnes d’essais ont été réalisées sur le graphite EDM-3, comme matériau modèle. En effet, ce dernier possède des propriétés optiques proches de l’UO₂ et une température d’utilisation possible très haute (3500°C). Nous avons ainsi présenté les différents protocoles de caractérisation des propriétés optiques du matériau : réflectivité spectrale, instrumentation via TC, couple des trois valeurs d’émissivité des pyromètres bichromatiques. Ces valeurs ont ensuite été comparées à la bibliographie et nos résultats ont permis de compléter les données reportées à haute température. Les travaux expérimentaux ont démontré la capacité de l’expérience développée à pouvoir effectuer des chauffes contrôlées sur graphite jusqu’à 3000°C. Les vitesses de montée atteintes ont été de l’ordre de 150°C/s pour les montées linéaires jusqu’à 3000°C, mais des vitesses bien supérieures sont envisageables, notamment sur des échantillons de plus petites dimensions. Ce travail s’est appuyé notamment sur la mise en place de protocoles de calibration robustes pour déterminer les valeurs d’émissivité et sur le développement d’un modèle numérique 3D permettant de reproduire les expériences sur une large gamme de paramètres. Ce dernier, malgré quelques limitations au delà de 2500°C, permet d’obtenir des résultats très satisfaisants sur les valeurs de montée et de paliers en température. La simulation de la phase de refroidissement est cependant moins précise, mais elle n’a pas été au centre de notre attention. Les conditions limites et hypothèses utilisées pour une montée rapide en température par un laser ne sont

probablement pas optimales pour calculer un refroidissement lent par conduction (par exemple, l'hypothèse où l'impact du porte-échantillon est négligeable n'est plus correcte).

Au final, l'ensemble de la plateforme a démontré sa robustesse avant une utilisation sur l' UO_2 .

V. Vers la reproduction de la thermique d'un RIA sur l' UO_2 par chauffage laser

Sommaire

A	Introduction	154
B	Procédé de mise en forme d'un faisceau laser gaussien annulaire	154
	B.1 Solutions techniques	154
	B.2 Mise en oeuvre expérimentale	159
C	Validation des concepts de chauffe RIA sur du graphite EDM-3	172
	C.1 Résultats expérimentaux	173
	C.2 Confrontation Simulation/Expérience	177
D	Application des concepts de chauffe RIA sur UO_2	183
	D.1 Echantillons	183
	D.2 Etudes expérimentales	190
	D.3 Confrontation Simulations/Expériences	204
E	Conclusion	208

A. Introduction

Dans les chapitres précédents, nous avons présenté la plateforme expérimentale, la méthodologie de calibration, et la réalisation de chauffes contrôlées par laser sur du graphite EDM-3. Les expériences conduites sur ce matériau modèle ont permis d'une part de valider des protocoles de calibration de l'instrumentation et d'autre part de confronter nos simulations à des expériences. Suite à ces premières étapes notre objectif est de réaliser une chauffe contrôlée par laser s'approchant au plus près des gradients thermiques d'un RIA sur UO_2 . Pour cela, nous allons nous baser sur le scénario de chauffe annulaire, que nous avons décrit au chapitre II et que nous allons maintenant mettre en place. Le chapitre va se diviser en trois grandes parties. La première abordera la mise en forme d'un faisceau annulaire, avec la présentation des techniques optiques permettant de transformer un faisceau gaussien en faisceau gaussien annulaire et les choix retenus dans le cadre de la thèse. Nous présenterons ensuite les résultats de la caractérisation de ce faisceau, essentiels pour effectuer des simulations dans les conditions de l'expérience. La seconde partie décrit la mise en application du scénario de chauffe annulaire sur le graphite EDM-3, utilisé de nouveau comme matériau modèle. Ceci nous permettra de valider les différents concepts de chauffe. Nous poursuivrons avec une description des échantillons d' UO_2 , une étude de leurs propriétés optiques et la calibration de l'instrumentation sur ces derniers, cela étant l'ultime pré-requis avant l'application des concepts de chauffe proposés sur UO_2 , qui est l'objet de la dernière partie du chapitre. Nous confronterons enfin les valeurs obtenues aux simulations et discuterons les résultats obtenus.

B. Procédé de mise en forme d'un faisceau laser gaussien annulaire

Comme nous l'avons décrit dans le chapitre précédent, le faisceau laser en sortie du collimateur a un profil d'intensité gaussien. Ce profil est lié à la distribution d'intensité dans la fibre optique (fibre optique monomode) et ne peut pas être modifié de façon interne au système laser, c'est-à-dire avant sa sortie du collimateur. Compte tenu du collimateur installé, le faisceau gaussien a un diamètre de 13,5 mm (à $1/e^2$) et une symétrie radiale. Éventuellement cette dimension peut être changée de façon simple en utilisant un autre collimateur commercial. La mise en forme annulaire doit en revanche être effectuée à l'aide d'un système optique à développer spécifiquement et à mettre en place sur l'expérience.

B.1. Solutions techniques

Il existe plusieurs procédés de mise en forme de faisceau Laser permettant d'obtenir à partir d'un faisceau laser gaussien un faisceau annulaire [152]. Nous

listons ci-après différentes méthodes classiquement utilisées avec leurs avantages et inconvénients, et présenterons les méthodes sélectionnées.

B.1.a. Obturation par une ouverture annulaire

La première méthode consiste à faire traverser au faisceau laser une ouverture annulaire puis à utiliser différents systèmes optiques (par exemple deux lentilles) pour réduire et ré-imager le faisceau annulaire aux dimensions voulues (Figure V.1).

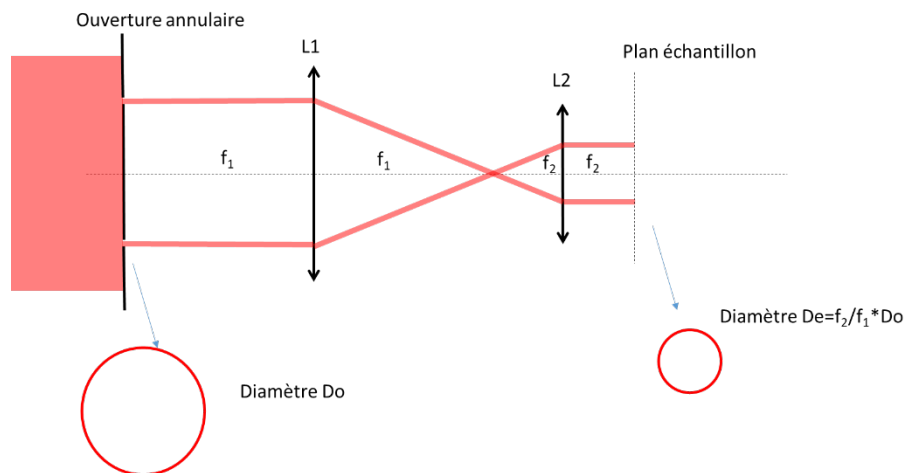


FIGURE V.1. – Création d'un faisceau annulaire à l'aide d'une ouverture et d'un montage géométrique simple

On comprend que ce procédé implique une perte extrêmement importante de puissance en sortie et la technique est principalement utilisée pour des applications particulières dans lesquelles le rendement n'est pas une problématique [153, 154]. La puissance de sortie est clairement un facteur majeur dans notre problématique du RIA, ainsi cette approche ne peut pas être retenue.

B.1.b. Axicons

Un axicon est un composant optique prismatique de révolution (appelé aussi « lentille conique ») permettant d'obtenir un faisceau annulaire à partir d'un faisceau collimaté (Figure V.2) [155]. Selon l'orientation du cône vers l'extérieur ou l'intérieur, on parlera d'axicon positif ou négatif.

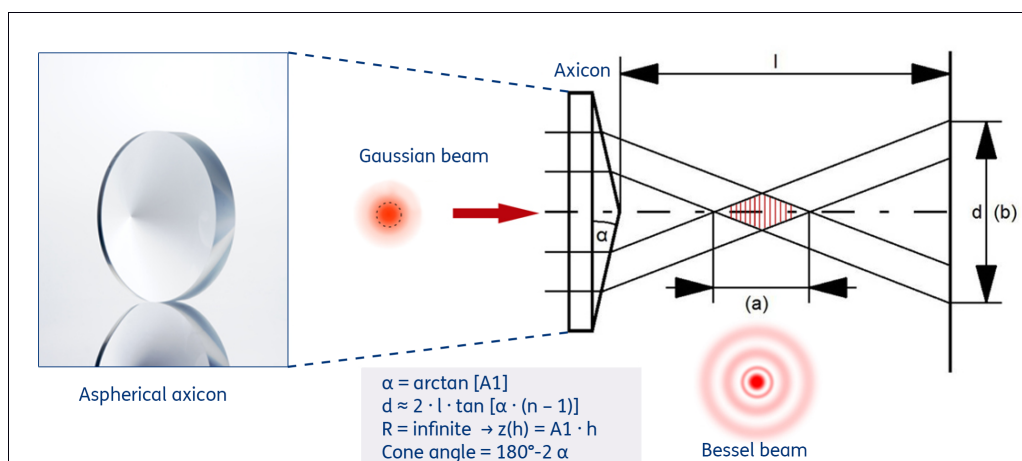


FIGURE V.2. – Principe de fonctionnement d'un axicon "positif" (extrait du site d'Asphericon, fournisseur des composants utilisés dans la thèse)

En combinaison avec une lentille convergente (figure V.3), l'utilisation d'axicon est la méthode la plus simple pour générer un faisceau annulaire supportant de fortes puissances laser, notamment dans le domaine des procédés lasers [152–156]. Sur cette base il existe également des montages plus sophistiqués permettant de contrôler et de faire varier le diamètre ou la largeur de l'anneau. Néanmoins le soin porté à l'alignement de ce type de dispositif optique est critique [157]

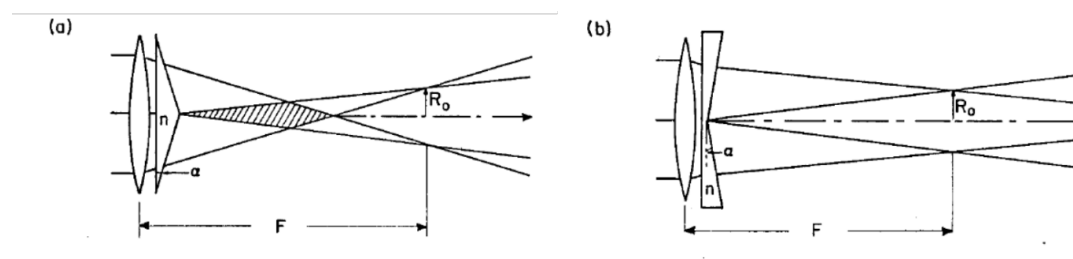


FIGURE V.3. – Génération d'un faisceau annulaire focalisé à partir d'un faisceau gaussien en utilisant des montages simples à base d'axicons positifs ou négatifs [158]

Dans les 2 montages présentés figure V.3, celui à base d'axicon négatif (b) serait à privilégier car il évite la présence d'une zone de forte intensité, représentée en gris sur la figure (a), pouvant générer des points chauds sur les optiques traversées dans cette zone. De tels composants (axicons négatifs) sont cependant plus complexes à fabriquer et non disponibles à des coûts raisonnables. On doit donc dans notre cas se baser sur le schéma (a) pour cette approche géométrique.

Le rayon de l'anneau s'exprime en fonction des caractéristiques de l'axicon et de la lentille :

$$R_{an} \approx (n - 1)\alpha F \quad (V.1)$$

Avec n l'indice du matériau, α l'angle de l'axicon et F la focale de la lentille. L'anneau a un profil d'intensité gaussien dont la largeur théorique est limitée par la diffraction au plan focal et s'exprime [156] :

$$2\omega_{an} = 1,05 (F\lambda)/\omega_0 \quad (\text{V.2})$$

Avec ω_{an} le rayon à $1/e^2$ de l'anneau, ω_0 le rayon à $1/e^2$ du faisceau incident, F la focale de la lentille et λ la longueur d'onde. La Figure V.4 présente ces dimensions clés qui nous permettront par la suite d'étudier et de définir la géométrie du faisceau à la surface de l'échantillon.

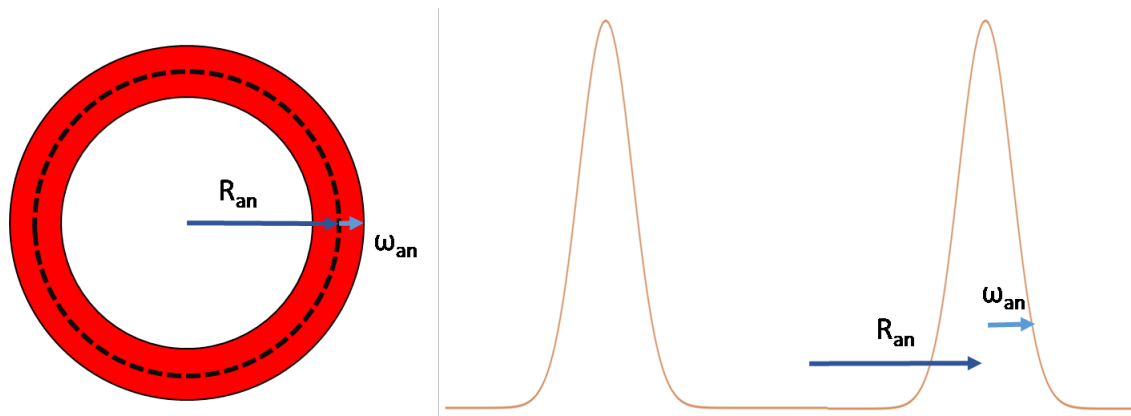


FIGURE V.4. – Schéma du faisceau obtenu et des dimensions permettant sa définition spatiale

B.1.c. Optiques diffractives

Les 2 précédentes méthodes utilisent des techniques basées sur des montages d'optique géométrique (optique réfractive). Il est également possible d'utiliser des techniques d'optique diffractive pour mettre en forme le faisceau laser [159]. Dans ce cas un composant diffractif (masque de phase modifiant le front d'onde du faisceau incident) peut être utilisé pour générer la fonction optique d'un axicon, ou d'un ensemble axicon+lentille (Figure V.5). Ce composant peut être un élément actif tel qu'un modulateur à cristal liquide qui a l'avantage d'être programmable et modifiable à volonté, cependant il n'est pas possible d'utiliser de telles techniques avec des lasers de forte puissance. Le composant dans notre application est donc nécessairement un élément passif tel qu'une lame de silice gravée, ce qui implique qu'aucune modification ne peut être faite sur la fonction optique une fois le composant installé (composants généralement très onéreux). Un exemple d'un tel composant est donné figure V.6.

Le principal avantage est qu'avec les technologies actuelles, pratiquement n'importe quelle distribution d'intensité peut être créée, notamment une fonction de type axicon négatif. En outre un seul composant mince peut être placé en sortie

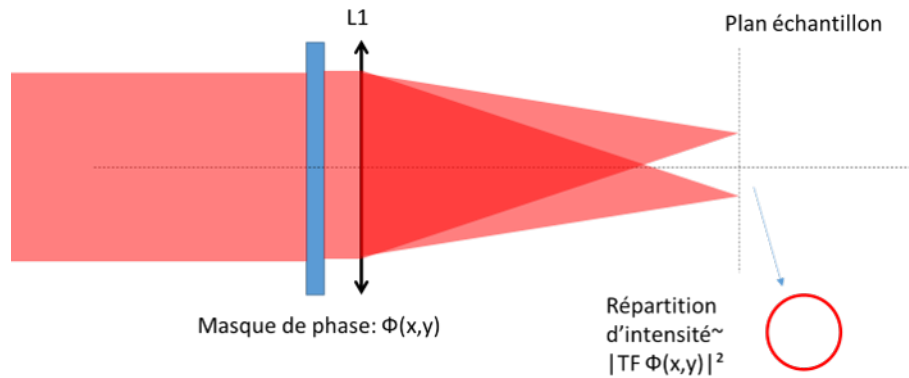


FIGURE V.5. – Création d'un faisceau annulaire à l'aide d'une optique diffractive

du laser pour cela, ce qui rend le montage très simple. L'inconvénient reste le prix et éventuellement un résiduel d'intensité dans l'ordre 0 (point focal de la lentille) lié à des imperfections du composant.

B.1.d. Déplacement à grande vitesse

Une alternative à la génération d'un faisceau annulaire peut être d'utiliser un faisceau focalisé se déplaçant à grande vitesse suivant une trajectoire circulaire, pour générer au final un profil d'échauffement annulaire [160] (Figure V.7). De telles techniques sont utilisées dans le milieu industriel pour la découpe laser (trépanage) et peuvent être mises en place facilement avec le matériel disponible sur la plateforme (tête de gravure laser). Cependant, compte tenu des dynamiques temporelles recherchées (durée de chauffe < 100 ms) et de la dimension de l'anneau (8 mm), une vitesse de déplacement linéaire de $\pi \cdot 8 \text{ mm}/0,1 \text{ s} = 250 \text{ mm/s}$ est nécessaire, ce qui est au-delà des capacités de ces systèmes de gravure.

B.1.e. Autres techniques

Il existe d'autres possibilités pour générer un faisceau annulaire mais trop complexes pour être envisagées pour notre application, qui doit au final être compatible avec la nucléarisation du système :

- Fibre optique supportant un mode guidé de type annulaire
- Utilisation de lames prismatiques [161]
- Combinaison d'optiques asphériques [162]
- La combinaison de différents éléments diffractifs pour créer un faisceau annulaire à profil plat [163]
- Composant de type Tunable Acoustic Gradient [158, 164, 165]

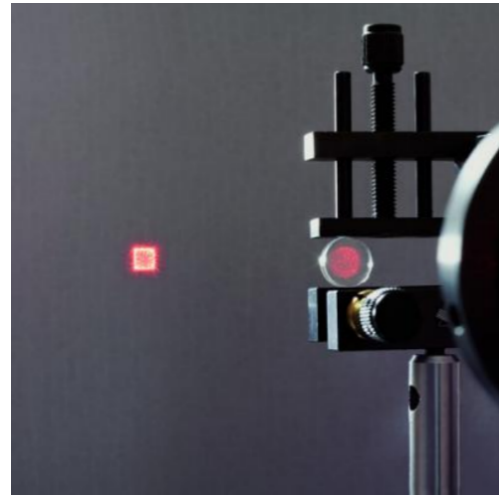
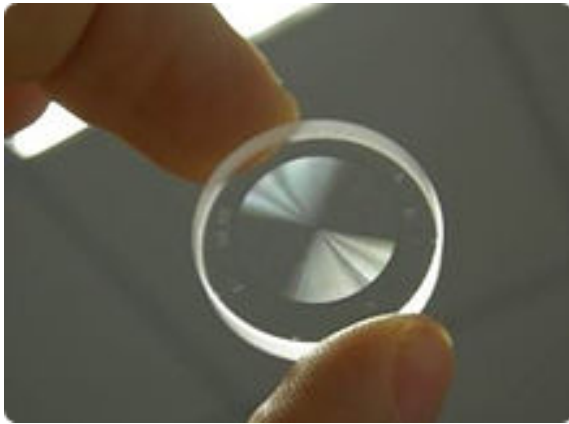


FIGURE V.6. – A gauche : Composant optique diffractif (société SILIOS). A droite : exemple d'un composant optique diffractif transformant un faisceau gaussien circulaire en faisceau carré (tiré du site www.eksmaoptics.com)

B.1.f. Conclusion

Au final, les 2 techniques (axicon, optique diffractive) ont chacune leur intérêt et doivent être évaluées en termes de faisabilité technique, performance (profil réel obtenu), facilité de mise en œuvre (transfert en laboratoire de haute activité) et coût. Au cours de la thèse, seule la technique Axicon a pu être mise en œuvre mais au moment de la rédaction les optiques diffractives ont été approvisionnées et sont prêtes à être testées.

B.2. Mise en oeuvre expérimentale

B.2.a. Contraintes expérimentales et choix des composants

L'objectif est de générer un faisceau annulaire de diamètre 8 mm avec une largeur d'environ 200 μm . Ces caractéristiques correspondent typiquement à ce que nous avons présenté au chapitre I sur la figure I.22. Compte tenu des dimensions de la chambre à vide et de la distance hublot / échantillon, le système optique doit être situé à plus de 25 cm de l'échantillon, pour éviter de placer des composants dans la chambre (Figure V.8).

Des lentilles et des axicons sont disponibles de façon standard chez des fournisseurs d'optique, cependant leur gamme est restreinte : focale de lentilles de 250, 500, 1000 mm ; angles d'axicons de 0,5, 1 et 5 degrés. On se basera donc uniquement sur des composants standards dans un premier temps. Sur la base des formules V.1 et V.2, les combinaisons détaillées dans le tableau I sont possibles pour un montage à base d'une lentille convergente et d'un axicon positif. Les épaisseurs d'anneau

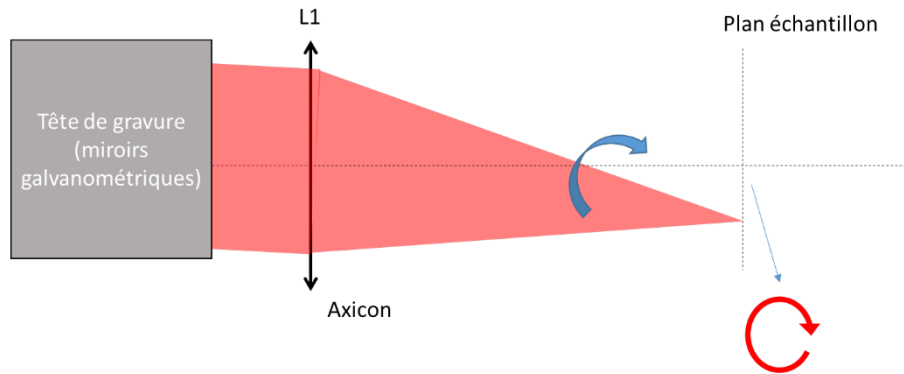


FIGURE V.7. – Création d'un faisceau annulaire à l'aide d'un déplacement circulaire à grande vitesse

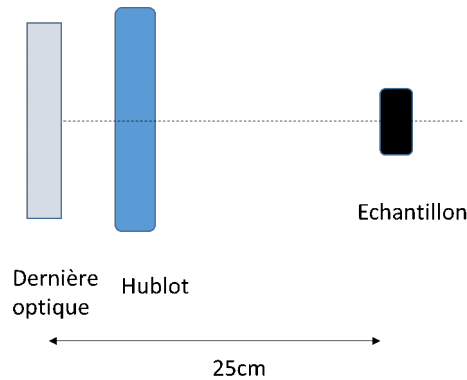


FIGURE V.8. – Contraintes expérimentales imposées par la chambre à vide

sont également calculées sur la base d'un faisceau d'entrée de diamètre 13,5 mm, en supposant le montage parfait (limité par la diffraction).

Combinaison	Focale	Angle	Rayon de l'anneau (R_{an})	Épaisseur de l'anneau ($2 \omega_{an}$)
A	250 mm	2°	3.9 mm	40 μm
B	500 mm	1°	3.9 mm	80 μm
C	1000 mm	0.5°	3.9 mm	160 μm

TABLE I. – Rayon et épaisseur de l'anneau obtenu en fonction de la focale de la lentille et de l'angle de l'axicon utilisés.

Compte tenu de ces éléments la combinaison C a été retenue en premier lieu (1000 mm/0,5 deg) : diamètre et épaisseur correspondant au besoin, et grande distance de travail (1 m) facilitant la mise en place. Cette mise en place s'effectue à l'aide de supports optomécaniques réglables (centrage critique des éléments par rapport au laser), comme nous pouvons le voir sur la figure V.9. Nous verrons plus loin qu'elle présente des inconvénients liés à la qualité des composants, et nous reviendrons donc sur ce choix (configuration 500 mm/1 deg).

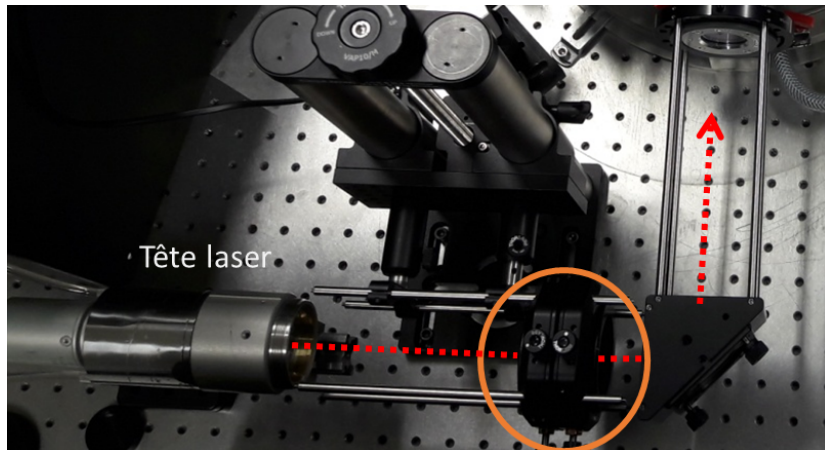


FIGURE V.9. – Exemple de positionnement de l'ensemble axicon+lentille

B.2.b. Problématique du point chaud

Il convient, comme présenté plus haut, d'évoquer la problématique inhérente à ce montage. Dans la configuration utilisée il se crée une zone de forte intensité sur l'axe en sortie de l'axicon (faisceau de Bessel, présentant un point chaud sur l'axe, cf figure V.10). Ce point chaud est suffisamment intense pour créer des dommages sur les optiques (figure V.11). Il est donc nécessaire d'éviter toute optique (miroir, hublot) dans la zone critique.

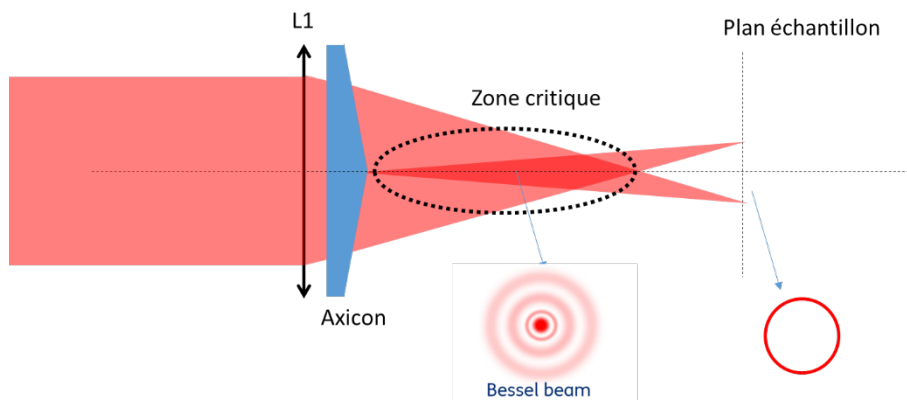


FIGURE V.10. – Problématique du point chaud généré par un axicon positif



FIGURE V.11. – Photo d'un endommagement d'un hublot de la chambre placé dans la zone du point chaud

La longueur 'L' de la zone critique peut être approximée par la formule suivante :

$$L \cong \omega_0 F / (R_{an} + \omega_0) \quad (\text{V.3})$$

Avec les paramètres définis précédemment. Compte tenu des paramètres initiaux du faisceau (diamètre 13,5 mm) la longueur de cette zone critique est de 62 cm environ. Il est possible de réduire cette longueur en diminuant le diamètre du faisceau incident (solution que nous avons adoptée dans un premier temps pour des raisons d'encombrement de la table optique).

B.2.c. Configuration Initiale - avec système afocal

La configuration utilisée pour les premiers essais est présentée figure V.12. Elle comporte notamment un système afocal pour les raisons invoquées précédemment, permettant de réduire la taille du faisceau collimaté d'un facteur 2 et utilise la combinaison d'optique C (lentille de focalisation de 1000 mm, angle d'axicon de 0,5°).

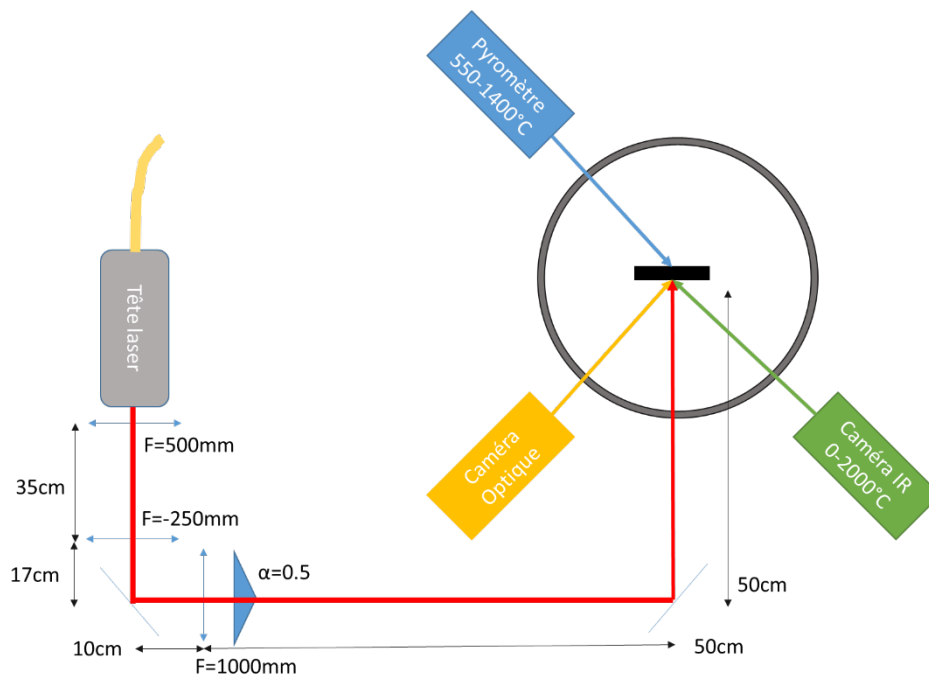


FIGURE V.12. – Schéma du montage expérimental avec une lentille de focale 1000 mm et un angle d'axicon de $0,5^\circ$

Les premiers essais ont été réalisés sur le graphite EDM-3 avec un porte-échantillon développé pour cette série d'expériences. Ce dernier est composé d'un support métallique permettant grâce à 3 vis en Zircon de maintenir l'échantillon en graphite avec le minimum d'échange thermique (voir figure V.13).

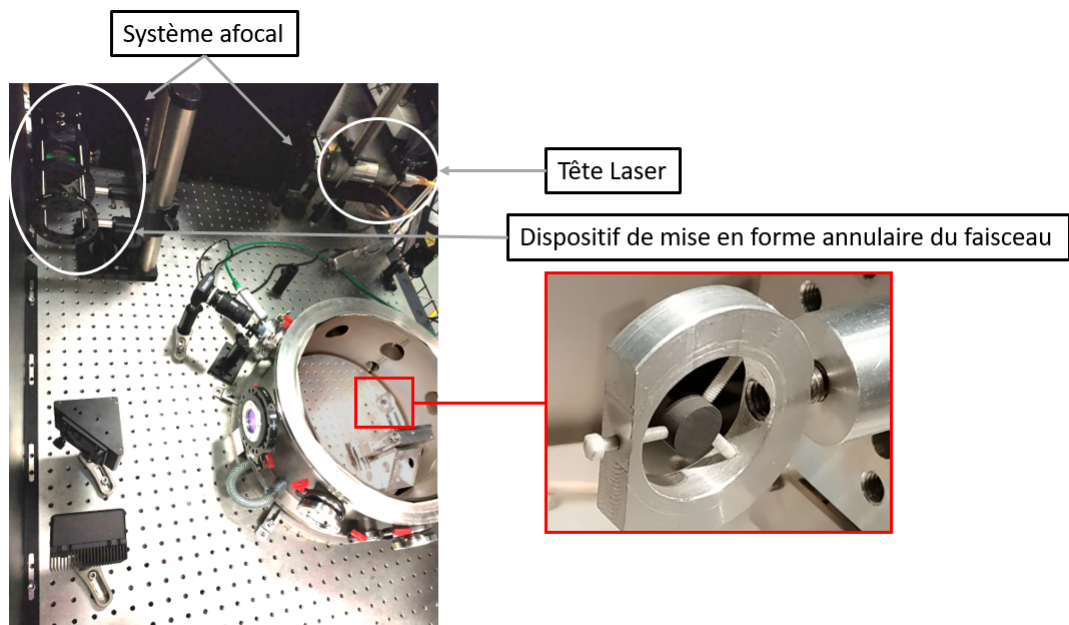


FIGURE V.13. – Photo de la table expérimentale et du porte-échantillon

Sur la figure V.14, se trouvent deux clichés obtenus par la caméra CCD, le premier d'une pastille d'EDM-3 dans le porte échantillon, le second est celui de la pastille exposée au faisceau (on observe la diffusion du faisceau sur la surface). Tout d'abord, on constate la présence de la forme annulaire recherchée par l'utilisation du dispositif axicon/lentille, conformément aux attentes. Ensuite, un faisceau résiduel est visible à l'intérieur du faisceau annulaire.

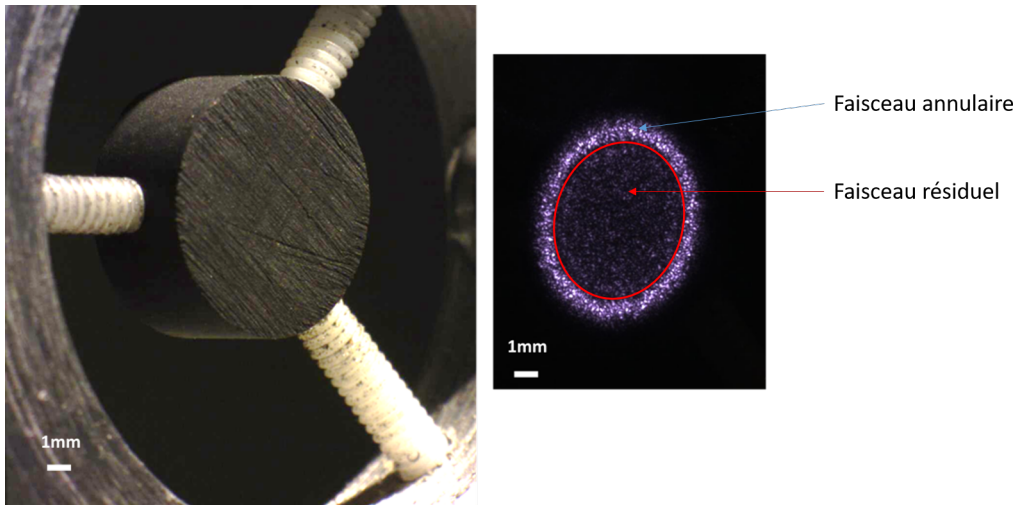


FIGURE V.14. – A gauche : Photo de la pastille. A droite : Observation du faisceau Laser sur la pastille. Les 2 images sont à la même échelle et prises dans les mêmes conditions (note : la granularité observée est liée à des effets de ‘speckle’ induits par l’optique d’imagerie, il s’agit d’un artefact d’imagerie lié à la cohérence du laser)

Avant de discuter du phénomène lié à la présence d’un résiduel de puissance à l’intérieur du faisceau annulaire, nous allons caractériser en détail le profil spatial du faisceau laser sur l’échantillon. Sur la figure V.14 nous avons tracé une coupe de l’intensité en fonction de l’axe horizontal (figure V.15). On peut observer les pics (zone rouge) caractéristiques du faisceau annulaire ainsi que la zone présentant un résiduel de puissance (zone grise) décrite plus haut. Ce dernier, sera ramené/simplifié à une valeur seuil à partir de laquelle on peut mesurer les dimensions de chaque sous-profil du faisceau. Un fit gaussien sera utilisé en parallèle pour caractériser les dimensions de l’anneau.

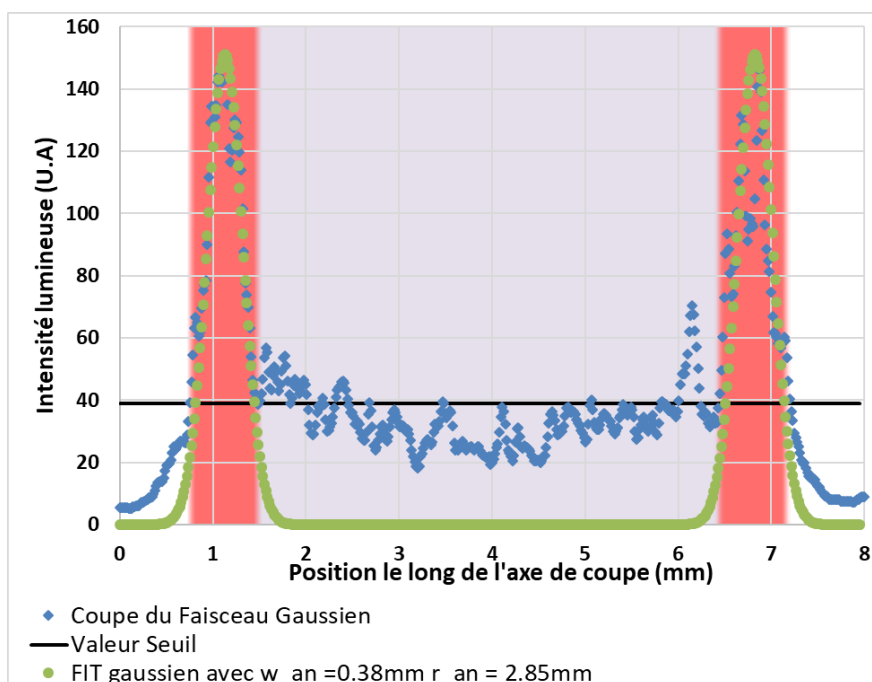


FIGURE V.15. – Graphique représentant le profil d'intensité du faisceau dans le plan échantillon

En utilisant la figure V.15, et le schéma V.4, nous déterminons dans notre configuration $R_{an} = 2,850 \text{ mm}$ et $\omega_{an} = 0,383 \text{ mm}$. Ces dimensions sont sensiblement différentes de celles présentées dans le tableau I. En effet ces valeurs étaient calculées pour un faisceau entrant de 13,5 mm dans le dispositif optique de mise en forme et non 6,75 mm. Un autre point à prendre en considération est la difficulté d'alignement de l'ensemble des éléments optiques avec le laser, et le positionnement de l'échantillon dans le plan focal. Ces écarts dans l'alignement pouvant entraîner des erreurs dans les dimensions du faisceau final.

Nous verrons plus loin que le résiduel de puissance a des conséquences importantes en termes de gradients de température. Il est donc important de comprendre son origine. Différentes explications peuvent être avancées :

- Erreurs dans les alignements optiques. Les alignements axicon/lentille/laser sont critiques et peuvent générer des aberrations optiques, comme décrit par exemple le manuscrit de master de Willstrand [166] – qui travaillait aussi sur la mise en forme de faisceau laser en recourant à un ou des axicons –, ou Arlt et al [157] qui discutent de la criticité de l'alignement des axicons sur l'uniformité de la mise en forme du laser. Pour y remédier, un contrôle du faisceau au plan échantillon doit être effectué au cours de l'alignement.
- Erreur sur le profil de l'axicon (lié au fabricant) : « pointe » non parfaite du prisme. La pointe de l'axicon peut avoir un profil arrondi, ce qui serait à l'origine du résiduel de puissance hors de l'anneau. C'est en effet au centre que le faisceau gaussien est le plus intense, le défaut central a donc une influence

majeure.

Après analyse du profil de l'axicon à l'aide d'un profilomètre optique (figure V.16) il est apparu que la deuxième hypothèse était la bonne : l'axicon présente un profil arrondi sur une zone d'environ 1 mm de diamètre au centre.

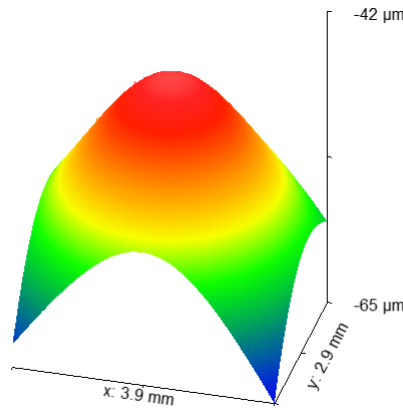


FIGURE V.16. – Représentation 3D de la mesure du profil de surface au centre de l'axicon

Pour minimiser cette contribution, le faisceau d'entrée doit avoir le diamètre le plus large possible et l'axicon choisi doit minimiser le défaut. Cette analyse ayant cependant été effectuée après les expériences, nous présenterons plus loin une solution ayant permis de minimiser la contribution de ce défaut.

Afin d'avoir des données d'entrées pour la simulation, nous avons cherché à évaluer le pourcentage de puissance présent dans le faisceau annulaire et la partie résiduelle. Dans la suite de ce chapitre, on se référera à ce pourcentage par l'appellation « rapport » ou « rapport de puissance des 2 parties du faisceau ». Pour déterminer ce dernier, nous avons utilisé un montage avec un iris d'ouverture réglable et un calorimètre. L'iris est disposé centré face au faisceau laser annulaire et permet d'ajuster la surface de collection de puissance (résiduel ou résiduel + annulaire). A partir d'une mesure pour différentes ouvertures de l'iris, on obtient le graphique présenté figure V.17 présentant le pourcentage de la puissance reçue par rapport à la puissance maximale envoyée, en fonction de la surface. Dans la zone de puissance résiduelle, il y a proportionnalité entre la puissance reçue par le calorimètre et la surface de collection. L'intensité du faisceau est donc uniforme dans cette partie. La zone de rupture de pente (identifiée en rouge) correspond au début du faisceau annulaire. Au niveau de la rupture de pente, la puissance reçue est d'environ 32%, c'est-à-dire qu'environ un tiers de la puissance du faisceau est contenue dans la zone centrale et seulement deux tiers dans le faisceau annulaire.

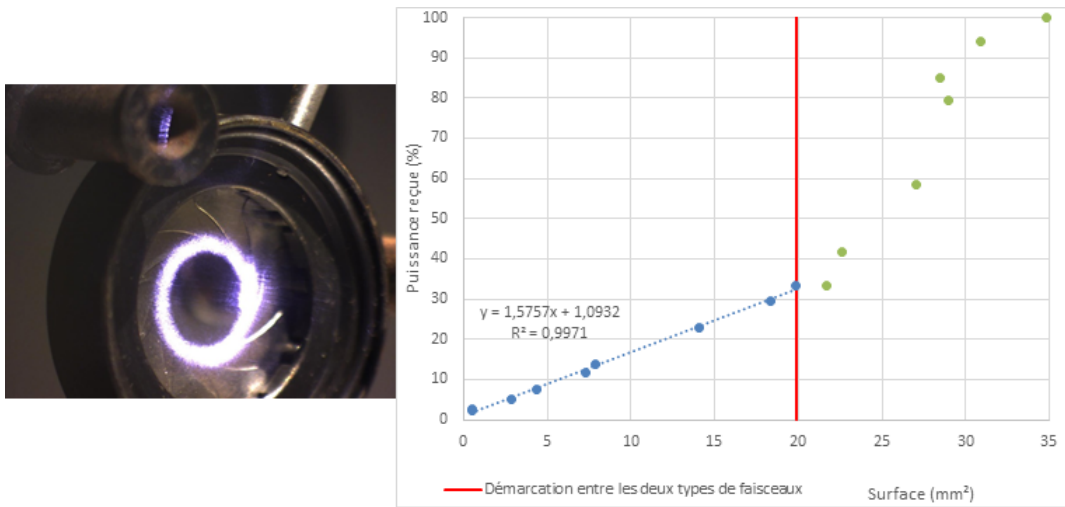


FIGURE V.17. – A gauche : Photo de l’iris. A droite : Puissance reçue par le calorimètre en fonction de la surface ouverte de l’iris

B.2.d. Configuration finale

Compte tenu de la problématique mise en évidence précédemment, nous avons travaillé sur une deuxième configuration basée sur un axicon d’angle 1 degré et une lentille de 500 mm. En ayant un faisceau d’entrée de 13,5 mm de diamètre, la zone critique définie plus haut est de l’ordre de 30 cm, ce qui convient à une mise en place sur le montage. La configuration adoptée est décrite sur la figure V.18.

Le profil du faisceau a été analysé dans cette configuration à l’aide d’un analyseur de faisceau laser Dataray présenté précédent (Sec C.4). Nous obtenons comme dimensions $r_{an} = 3,9 \text{ mm}$ et $\omega_{an} = 0,1 \text{ mm}$, ce qui est en accord avec les dimensions attendues (Figure V.19).

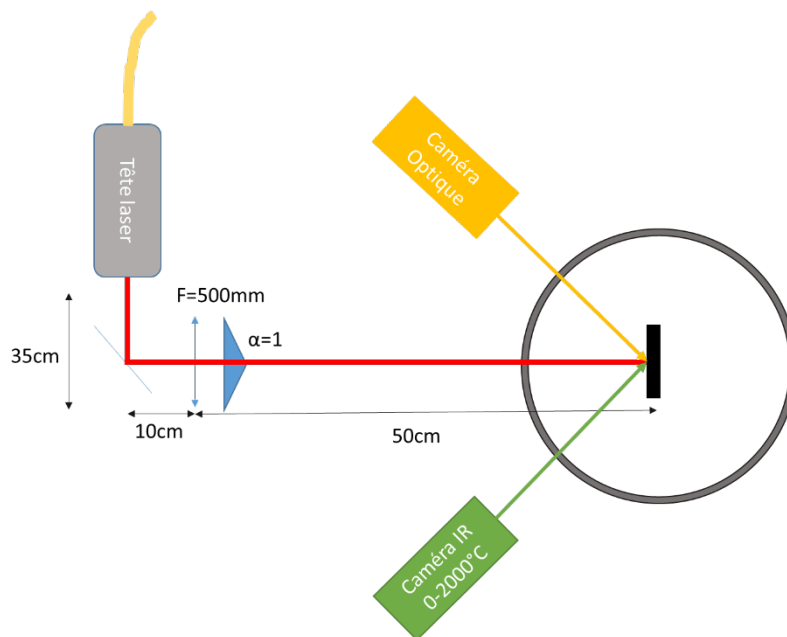


FIGURE V.18. – Schéma du montage expérimental pour une lentille de 500 mm et un angle d'axicon de 1°

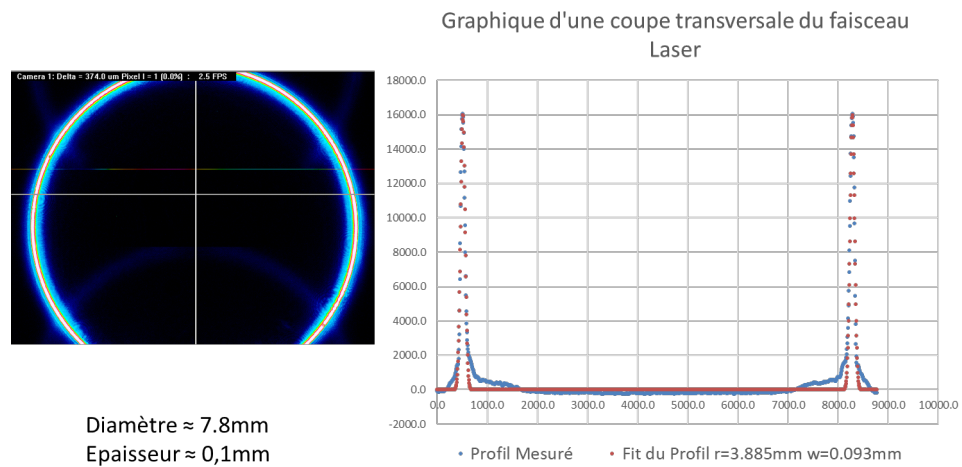


FIGURE V.19. – Profil du faisceau laser (note : la dimension du capteur utilisé pour ces caractérisations ne permet pas d'imager la totalité du faisceau)

On présente également sur la figure V.20 le profil du faisceau sur l'échantillon. Notons qu'il n'y a plus de faisceau résiduel visible.

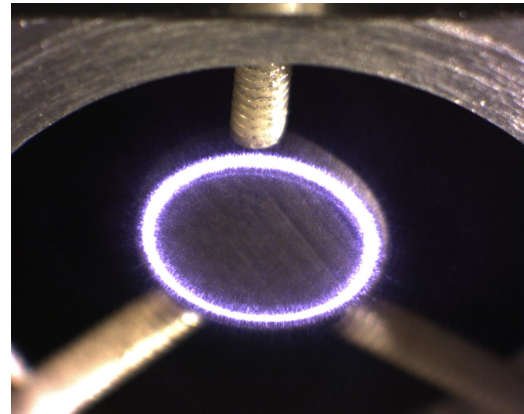
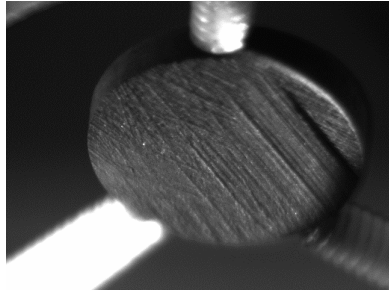


FIGURE V.20. – A gauche : Photo de la pastille de graphite EDM-3. A droite : Photo dans les mêmes conditions avec le faisceau laser

Pour aller plus loin dans la caractérisation de ce faisceau, nous avons cherché à connaître l'évolution des dimensions de l'anneau (son rayon et son épaisseur) en fonction de la distance entre le dispositif optique de mise en forme du faisceau (Axicon+lentille) et la cible. La possibilité d'ajuster les dimensions de l'anneau est en effet d'intérêt pour les expériences. Pour cela, nous avons installé le profilomètre laser Beamage-4M sur un rail à l'intérieur de la chambre, afin de modifier d , la distance entre l'axicon et le capteur (figure V.21).

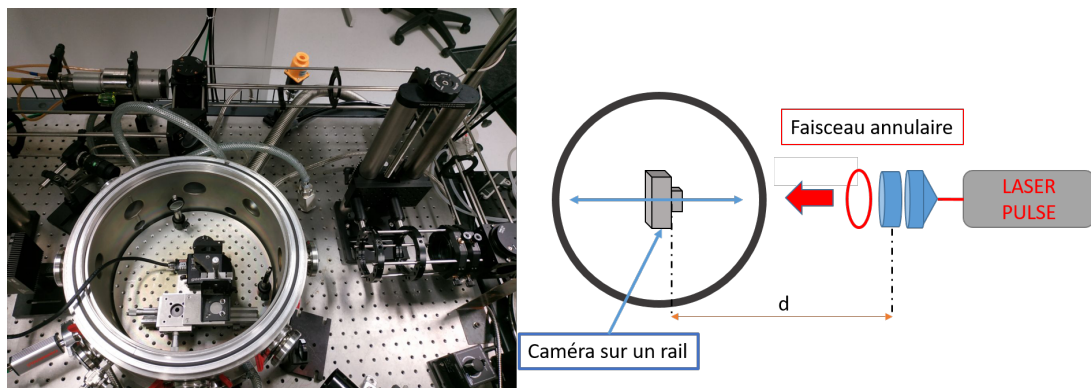


FIGURE V.21. – Configuration permettant d'étudier la variation des dimensions de l'anneau en fonction de la distance entre la cible et l'axicon

Sur la figure V.22 nous présentons les différents faisceaux annulaires obtenus en fonction de d . Ainsi lorsque la distance d est proche de la focale ($F=500$ mm), l'épaisseur de l'anneau est minimale. Plus d s'éloigne de la focale, plus nous observons un anneau épais et plus le diamètre augmente. Lorsque la distance entre le dispositif de mise en forme et la cible est réduite, l'épaisseur de l'anneau augmente également et le rayon de l'anneau est réduit. Ces deux observations sont conformes

au schéma présenté figure V.3 avec l'axicon positif et à ce qui peut être attendu par simple optique géométrique.

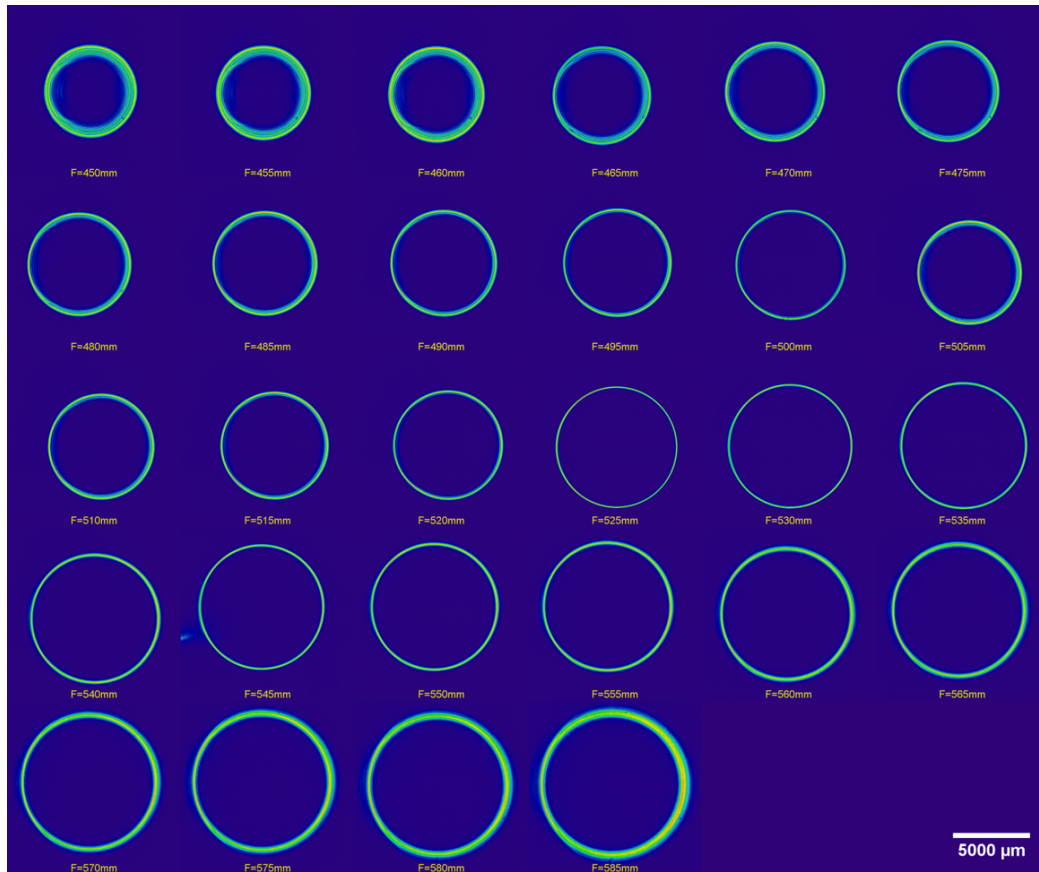


FIGURE V.22. – Images obtenues par profilomètre laser des anneaux en fonction de la distance entre l'axicon et la cible

Nous avons regroupé les valeurs mesurées pour le rayon de l'anneau et son épaisseur en fonction de d sur la figure V.23. Cette étude est particulièrement intéressante pour notre application, car cela permet d'anticiper les dimensions d'anneaux et ainsi de choisir avec soin le meilleur compromis en fonction de l'objectif : un léger décalage du système de mise en forme pourra être effectué pour ajuster les dimensions de l'anneau.

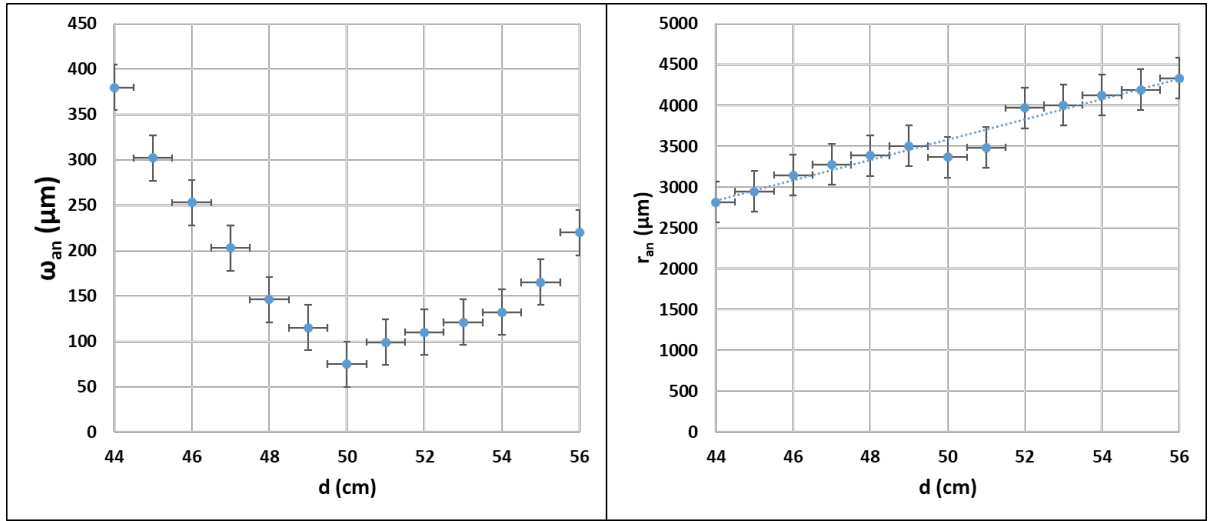


FIGURE V.23. – Evolution de ω_{an} et r_{an} en fonction de d

C. Validation des concepts de chauffe RIA sur du graphite EDM-3

Notre démarche a été dans un premier temps d'effectuer des essais sur du graphite EDM-3, dont nous maîtrisons bien le comportement sous flux laser. Nous avons fait fabriquer des échantillons de graphite EDM-3 de dimensions correspondant à celles des pastilles d' UO_2 utilisées dans nos simulations et que nous prévoyons d'utiliser (8 mm de diamètre et 1 mm d'épaisseur). Plusieurs campagnes d'expériences se sont déroulées, mettant en jeu les 2 configurations de mise en forme du faisceau que nous avons présentées dans les sections précédentes. Compte tenu des caractéristiques différentes du faisceau dans ces 2 configurations, nous ferons la distinction entre les 2 jeux de données. Les protocoles d'expériences ont consisté à effectuer des montées progressives en puissance (de 150 W à plus de 1000 W) et en durée d'exposition (jusqu'à quelques centaines de millisecondes) pour tester l'instrumentation et recueillir des jeux de données paramétriques.

Dans les sections suivantes nous présenterons séparément les résultats pour les deux séries puis la confrontation entre les valeurs expérimentales et les valeurs issues des simulations. Étant donné la distribution particulière du faisceau laser dans la première configuration, un passage sera consacré à sa définition dans le modèle numérique.

C.1. Résultats expérimentaux

C.1.a. Configuration avec système afocal

Cette configuration, présentée section B.2.c, correspond à un anneau de dimensions $R_{an} = 2,850 \text{ mm}$ et $\omega_{an} = 0,383 \text{ mm}$, avec un résiduel de puissance au centre. Pour rappel nous utilisons dans ce cas un faisceau entrant d'environ $6,75 \text{ mm}$ sur un axicon d'angle $\alpha = 0,5^\circ$ et une lentille de focale $F = 1000 \text{ mm}$.

Sur la figure V.24 se trouve une image brute typique obtenue par la caméra thermique observant l'échantillon avec une incidence de 45° , et sur la droite l'image traitée via une macro sur Fiji (version « étendue » de ImageJ [167]) explicitée dans l'annexe E. Cette macro permet de retailer les images, de corriger la déformation due à l'angle d'incidence, d'inscrire une échelle, de les coloriser en fonction des températures mesurées, d'associer une légende et d'obtenir un profil thermique le long d'un axe tracé. Nous ne présenterons que des images traitées par cette méthode dans la suite.

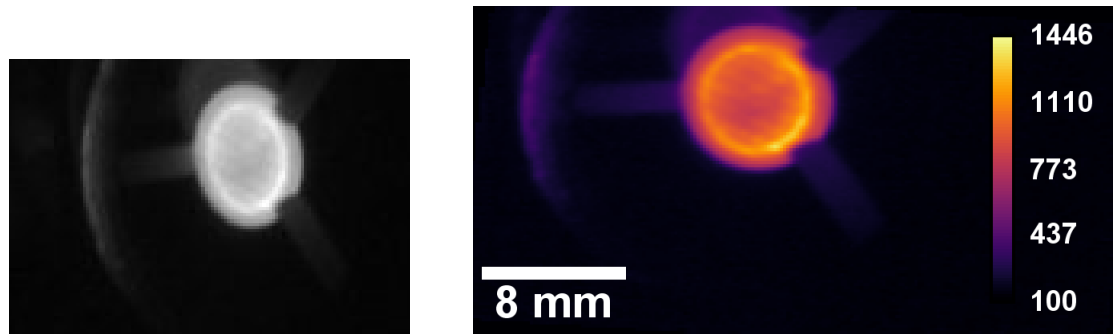


FIGURE V.24. – Image obtenue avant (à gauche) et après (à droite) traitement (en $^\circ\text{C}$)

Sur ces images thermiques nous pouvons extraire des profils de température suivant les axes horizontaux et verticaux, tel que cela est présenté sur les Figures V.25 et V.26 pour 2 expériences particulières.

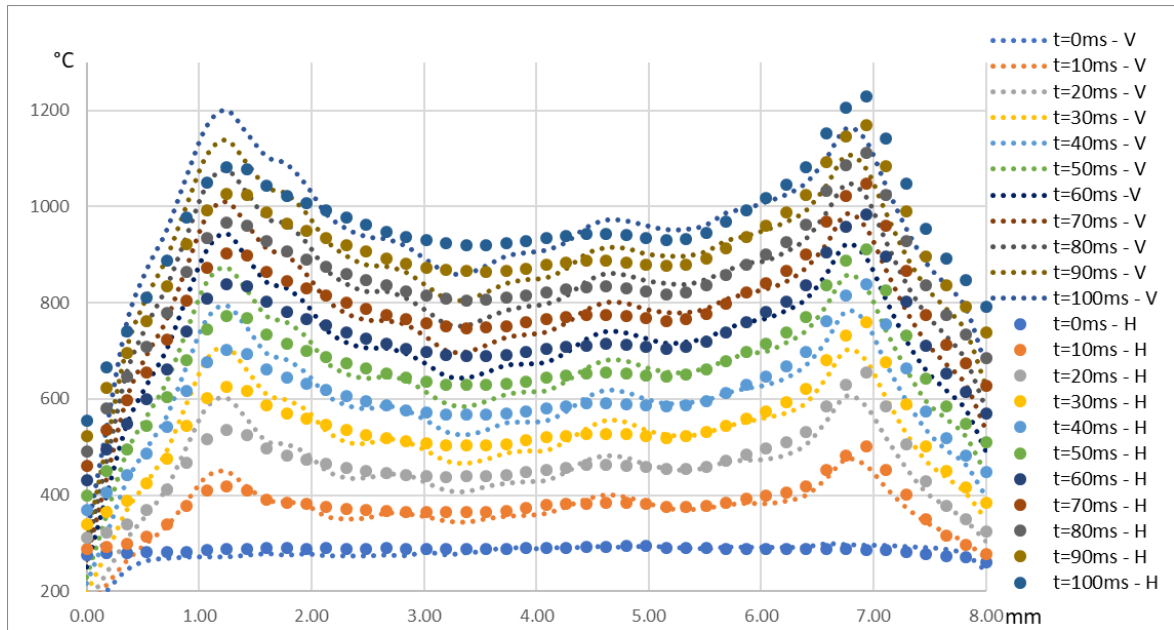


FIGURE V.25. – Profils thermiques en fonction du temps selon deux axes (vertical (V) et horizontal (H)) pour une chauffe de 750 W pendant 100 ms

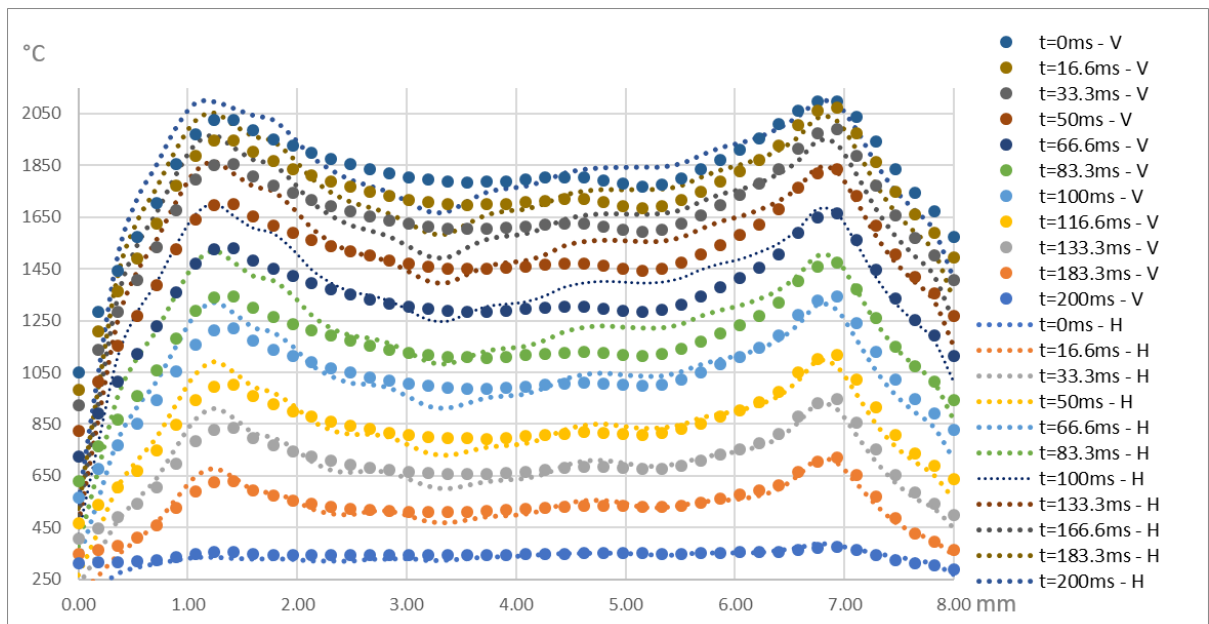


FIGURE V.26. – Profils thermiques en fonction du temps selon deux axes (vertical (V) et horizontal (H)) pour une chauffe de 1050 W pendant 200 ms

Nous pouvons observer sur ces courbes les deux pics en périphérie, dus à la forme annulaire du faisceau, qui sont bien visibles avec respectivement des maxima

à environ 1200 et 2100°C (limite de la caméra thermique). Le faible écart de température entre les maxima et les valeurs au centre de la pastille s'explique d'une part par le résiduel de puissance au centre du faisceau et d'autre part par la haute conductivité du graphite qui, avec un transport rapide de la chaleur dans l'ensemble de l'échantillon, limite les gradients thermiques dans le matériau. Cet effet ne sera pas présent sur l'UO₂, sa conductivité étant bien plus faible.

Un autre phénomène visible, et particulièrement le long de l'axe horizontal (représenté par les séries de points), est la différence entre les deux pics au même temps. Ce phénomène est attribué à un déséquilibre de la répartition du faisceau dû à un problème d'ajustement des optiques, le centre du faisceau ne coïncidant pas parfaitement avec le centre de l'axicon. Ce problème d'alignement est critique et nous l'avons déjà mentionné précédemment (Sec B.1.b). Nous pouvons également noter des hétérogénéités de température que nous attribuons aux « rayures » / « stries » sur la surface de la pastille (visibles particulièrement à l'intérieur du faisceau annulaire) dues au procédé de découpe des pastilles.

C.1.b. Configuration Finale

Des progrès dans l'alignement et le choix des optiques nous ont permis d'obtenir un deuxième jeu de données plus pertinent pour notre application. Ces résultats expérimentaux ont été obtenus en utilisant la seconde configuration présentée (section B.2.d) et dont les dimensions de l'anneau étaient : $r_{an} = 3,9 \text{ mm}$ et $\omega_{an} = 0,1 \text{ mm}$. Pour cela, nous utilisons un faisceau entrant d'environ 13,5 mm sur un axicon d'angle $\alpha = 1^\circ$ et une lentille de focale $F = 500 \text{ mm}$.

Une seule expérience sera présentée et détaillée ici : la chauffe maximale (1500 W pendant 100 ms), présentée Figure V.27. Cette chauffe est la plus démonstrative de la capacité de la plateforme expérimentale à produire des rampes thermiques annulaires de plusieurs milliers de degrés sur un temps court. Ceci étant l'objectif principal de ces essais sur un matériau modèle. D'autres chauffes sont présentées en annexe F, 600 W, 750 W, 1050 W et 1200 W.

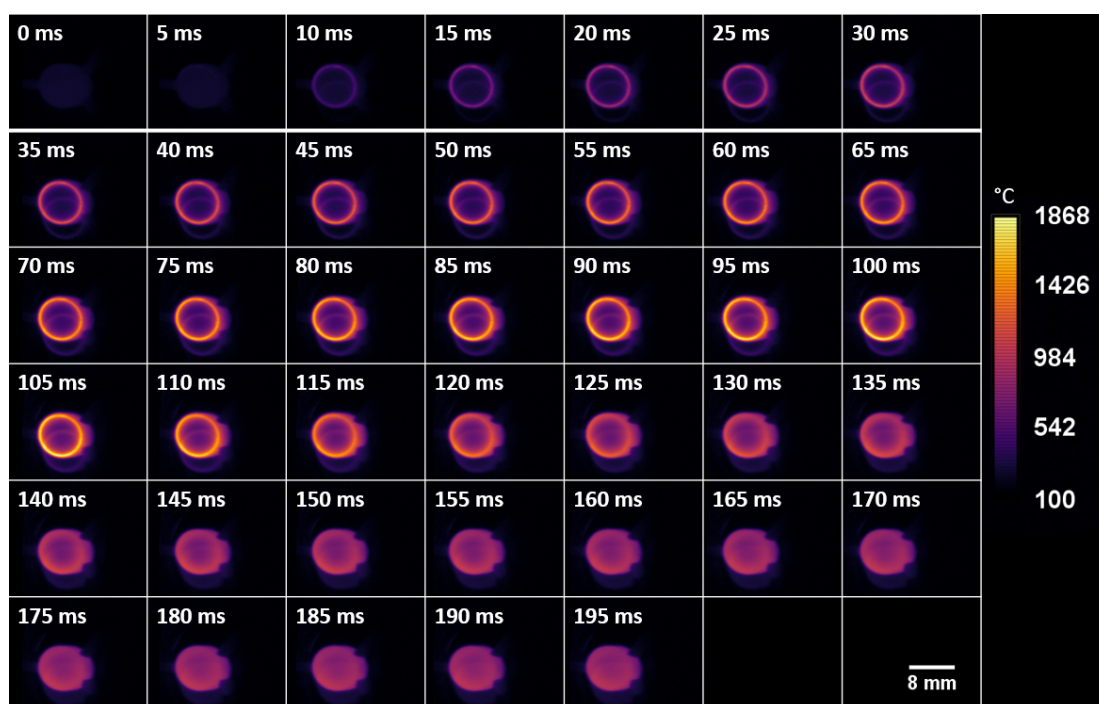


FIGURE V.27. – Mosaïque des images obtenues par la caméra thermique A655sc de la chauffe S2-1500W-100ms

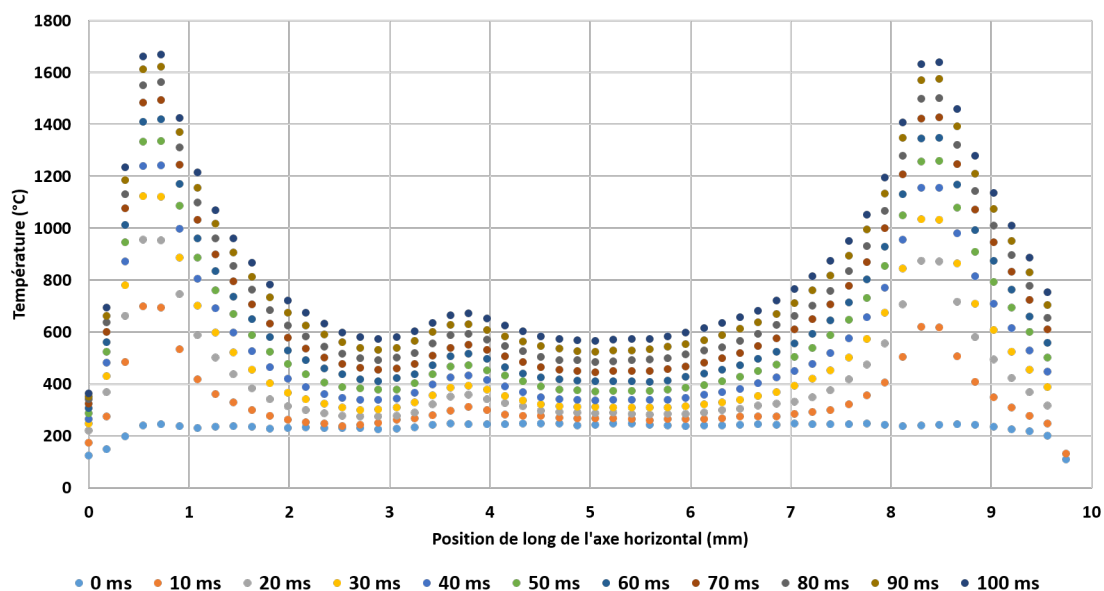


FIGURE V.28. – Profils thermiques à différents temps selon l'axe horizontal pour une chauffe de 1500 W pendant 100 ms

Les profils de température de cette chauffe sont reportés Figure V.28. Contraire-

ment aux résultats de la première série, on observe une élévation de la température faible en cœur de pastille (200 à 600°C), et une différence de température entre le pic en périphérie et le centre de la pastille bien plus importante. Cela conforte les analyses des différents faisceaux entre les deux séries, avec celui de la seconde série parfaitement maîtrisée et totalement annulaire. Un second sujet à discussion est l'élévation visible de température entre 3 et 5mm, qui correspond au centre de la pastille et est donc une zone non exposée au faisceau. L'explication est que cette « élévation » est en réalité un artefact de mesure, lié à une réflexion sur le hublot en germanium qui crée une seconde image du pic, légèrement décalé du pic original (visible sur la figure V.27). Ce phénomène était bien moins visible sur la première série d'expériences en raison du plus faible écart de température entre la zone exposée au faisceau et le centre de la pastille.

C.2. Confrontation Simulation/Expérience

Pour pouvoir comparer simulations et expériences, il est indispensable de bien décrire le terme source dans les simulations. Si les dimensions des anneaux pour les deux configurations utilisées sont connues grâce à nos caractérisations du faisceau (voir section B.2.c et B.2.d), le modèle numérique ne peut à ce stade qu'être paramétré par les valeurs d'entrées r_{an} et ω_{an} . Ce modèle conçu pour le scénario d'une chauffe annulaire ne décrit pas initialement la présence d'un résiduel de puissance à l'intérieur de l'anneau tel qu'obtenu par la première configuration. Ainsi avant d'aborder la confrontation entre simulations et expériences, la partie suivante va décrire le terme source spécifiquement utilisé dans le modèle pour prendre en compte ce faisceau particulier.

C.2.a. Présentation des termes sources

Pour rappel, les équations que nous avons introduites pour décrire un faisceau annulaire sont :

$$I(r_{an}, \omega_{an}) = I_{\max} e^{-2 \frac{(r-r_{an})^2}{\omega_{an}^2}} \quad (\text{V.4})$$

Avec I, l'intensité en $W.m^{-2}$, I_{\max} , l'intensité maximale (situé à $r = r_{an}$) en $W.m^{-2}$ et décrite ci-dessous, et r la distance à l'origine de l'anneau en m.

$$I_{\max} = \frac{P}{\pi \cdot \left(\frac{\omega_{an}^2}{2} \cdot e^{-\frac{2r_{an}^2}{\omega_{an}^2}} + r_{an} \cdot \frac{\omega_{an} \cdot \sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \cdot \text{erfc} \left(-\frac{\sqrt{2} \cdot r_{an}}{\omega_{an}} \right) \right)} \quad (\text{V.5})$$

Avec P, la puissance du laser en W et erfc la fonction définie par :

$$\text{erfc}(x) = \int_x^{\infty} e^{-t^2} dt \quad (\text{V.6})$$

Pour prendre en compte la présence d'un faisceau annulaire et d'un faisceau "top-

hat" à l'intérieur de celui-ci (un faisceau "Top-hat" est un faisceau dont l'intensité est répartie de manière homogène sur l'ensemble de la surface exposée), nous pouvons utiliser le terme "rapport" qui a été introduit comme le pourcentage d'intensité du faisceau laser dans la partie top-hat (section B.2.c). Ainsi :

$$I_{\text{Laser}}(r) = (1 - \text{Rapport}) I_{\text{annulaire gaussien}}(r) + (\text{Rapport}) * I_{\text{Top-hat}}(r) \quad (\text{V.7})$$

Avec :

$$I_{\text{Top-hat}}(r) = \begin{cases} r \leq r_f & \frac{P}{2\pi r_f^2} \\ r > r_f & 0 \end{cases} \quad (\text{V.8})$$

$$I_{\text{annulaire gaussien}} = \begin{cases} r < r_f & 0 \\ r \geq r_f & I_{\text{max}} e^{-2\frac{(r-R)^2}{\omega^2}} \end{cases} \quad (\text{V.9})$$

Avec r_f un paramètre permettant d'assurer la continuité entre les deux fonctions d'intensité, tel que :

$$\text{Rapport} * I_{\text{Top-hat}}(r_f) = (1 - \text{Rapport}) * I_{\text{annulaire gaussien}}(r_f) \quad (\text{V.10})$$

Soit :

$$\frac{\text{Rapport}}{(1 - \text{Rapport})} * \left(\frac{\omega^2}{4} * e^{-\frac{2R^2}{\omega^2}} + R * \frac{\omega \cdot \sqrt{\pi}}{2\sqrt{2}} * \text{erfc}\left(-\frac{\sqrt{2} \cdot R}{\omega}\right) \right) = r_f^2 * e^{-\frac{(r_f - R)^2}{\omega^2}} \quad (\text{V.11})$$

Dans la gamme $0 \leq r_f \leq R$, il n'existe qu'une solution à cette égalité, qui dépend des paramètres R_{an} , ω_{an} et Rapport. Dans la partie précédente nous avons établi ce terme "Rapport" à 33% dans la configuration 1000 mm/0,5 deg et 0% dans la configuration 500 mm/1 deg (pour retrouver l'équation générale d'un faisceau annulaire gaussien parfait). Le profil modélisé est présenté Figure V.29.

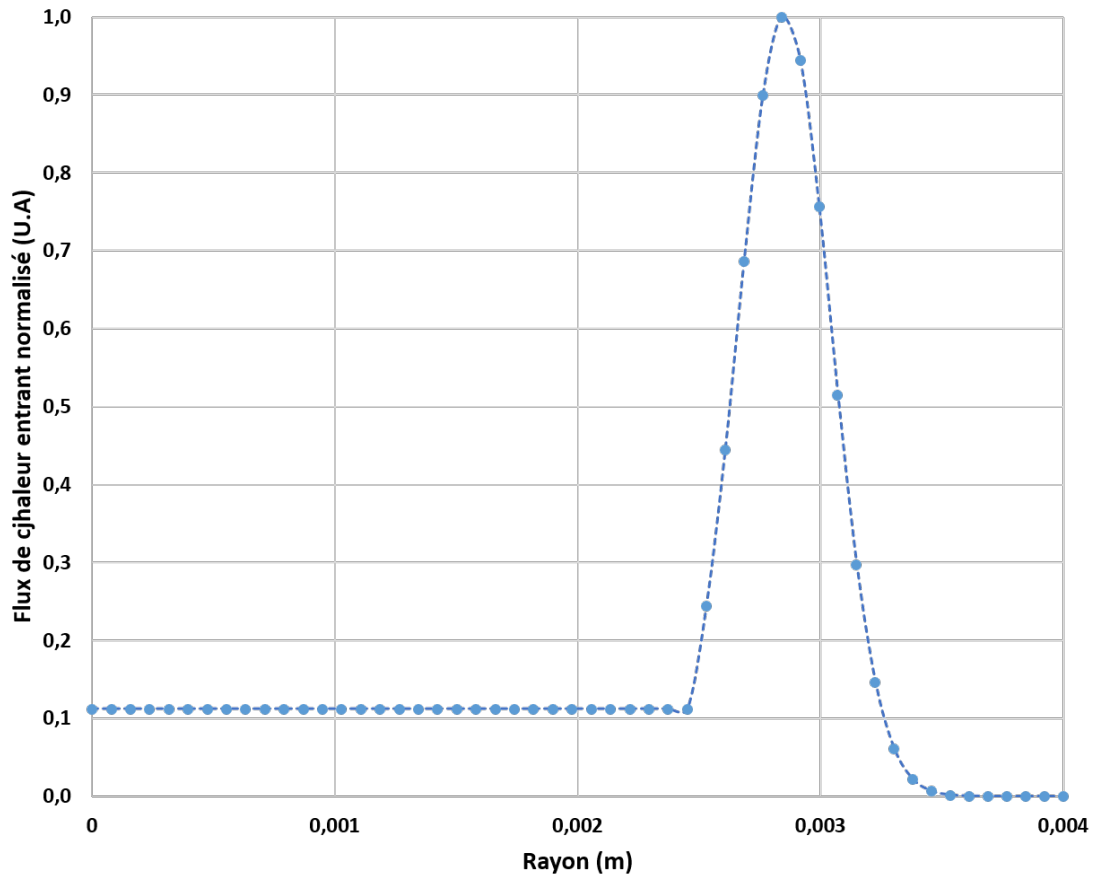


FIGURE V.29. – Flux de chaleur modélisé du laser en fonction de sa position radiale.

C.2.b. Configuration avec système afocal

Les deux graphiques présentés (fig V.30 et V.31) représentent une comparaison entre les valeurs expérimentales obtenues le long de l'axe horizontal à différents temps et celles calculées dans les mêmes conditions, pour les deux chauffes présentées dans la partie résultats expérimentaux : chauffes à 750 W et 1000 W respectivement.

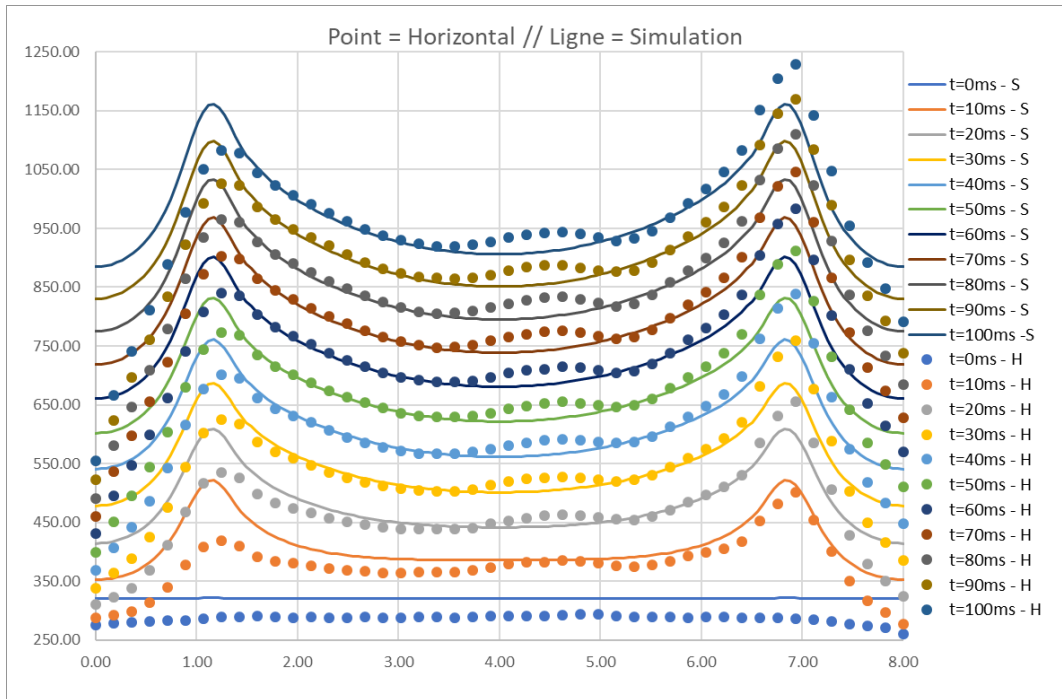


FIGURE V.30. – Profils thermiques (en °C) à différents temps selon l'axe horizontal (H) pour une chauffe de 750 W pendant 100 ms. Les valeurs numériques sont désignées par S dans la légende (avec rapport=33%, $T_{ini} = 300$ °C, $\omega_{an} = 0,3825mm$, $r_{an} = 2,850mm$ et $P_{laser} = 750W$) et les valeurs expérimentales par H.

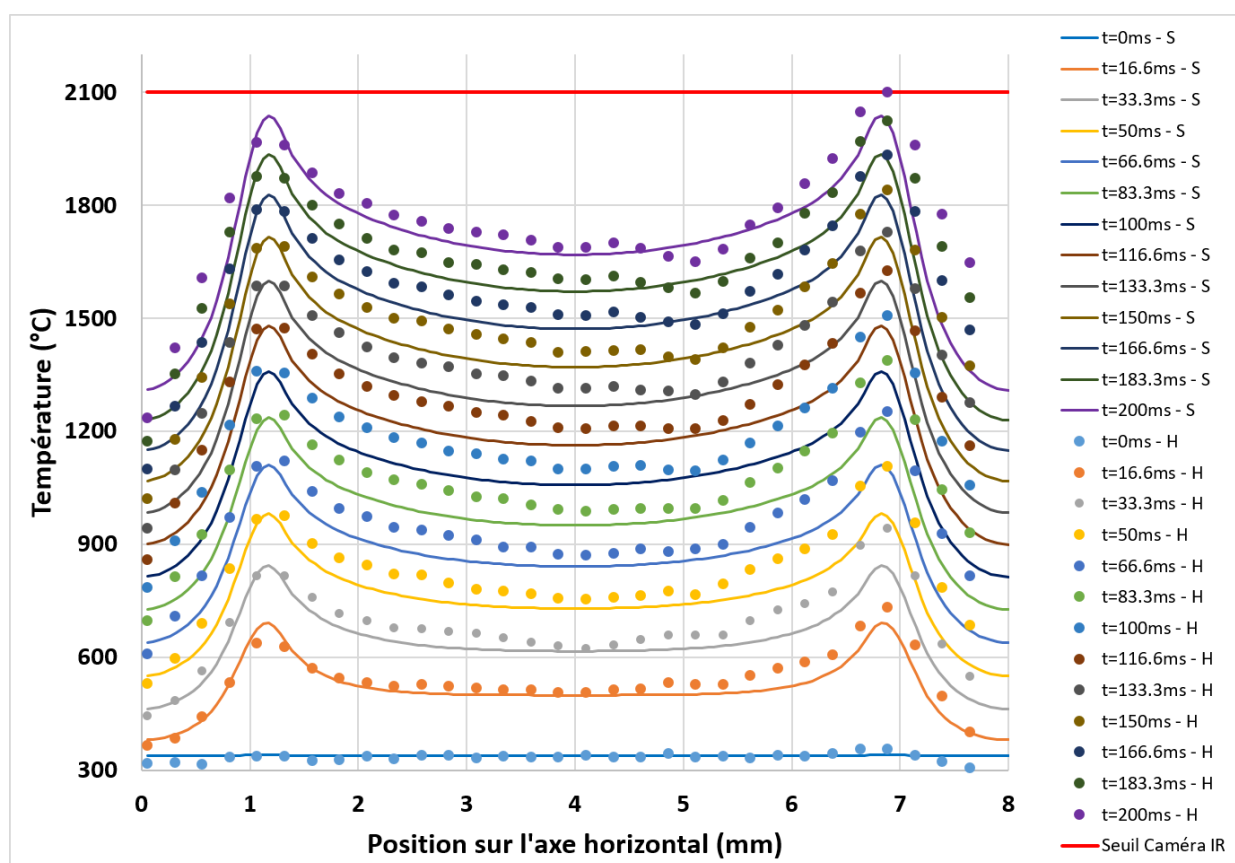


FIGURE V.31. – Profils thermiques (en °C) à différents temps selon l'axe horizontal (H) pour une chauffe de 1050 W pendant 200 ms. Les valeurs numériques sont désignées par S dans la légende (avec rapport=33%, $T_{ini} = 300\text{ °C}$, $\omega_{an} = 0,3825\text{mm}$, $r_{an} = 2,850\text{mm}$ et $P_{laser} = 1050\text{W}$) et les valeurs expérimentales par H.

Malgré des écarts locaux pouvant aller de 50 à 100°C, principalement dans les zones de pics de température, les valeurs numériques et expérimentales sont cohérentes. D'autant plus que les pics n'étant pas homogènes pour les valeurs expérimentales, on observe que les valeurs numériques des pics correspondent à la moyenne. Par exemple si nous regardons les courbes à "t = 100 ms" de la figure V.30, la valeur numérique maximale obtenue est d'environ 1160°C, tandis qu'expérimentalement les valeurs des pics sont égales à 1080 et 1230°C soit 1155°C en moyenne. Il en va de même pour les résultats de la figure V.31) où la valeur numérique est d'environ 2040°C au pic contre des pics expérimentaux se situant à 2100°C et 1965°C. Cela correspond à un pic moyen d'environ 2030°C.

Néanmoins, la simulation a ses limites. Si on observe les températures en bord de pastille, on constate un important écart, qui est en soit hors des zones d'intérêts étudiées (pic annulaire et centre de la pastille) mais qui représente malgré tout un défaut dans la modélisation. Certaines simplifications/hypothèses utilisées sont

trop réductrices, et particulièrement les phénomènes de bord, avec par exemple la non-prise en compte du porte-échantillon dans le modèle.

La confrontation entre le modèle numérique et les résultats expérimentaux s'avère donc satisfaisante avec la prise en compte du terme source correspondant à cette configuration expérimentale. La section suivante avec la configuration finale a cependant une plus grande importance avec une distribution du faisceau, qui est totalement annulaire. En effet, c'est cette configuration qui sera réutilisée pour l' UO_2 .

C.2.c. Configuration finale

Nous utilisons les valeurs issues des expériences avec la deuxième configuration présentée, celle sans faisceau résiduel, avec les dimensions de l'anneau : $\omega_{an} = 0,1 \text{ mm}$ et $r_{an} = 3,9 \text{ mm}$. Sur la figure V.32 nous comparons les données et les simulations correspondant à cette série d'expériences.

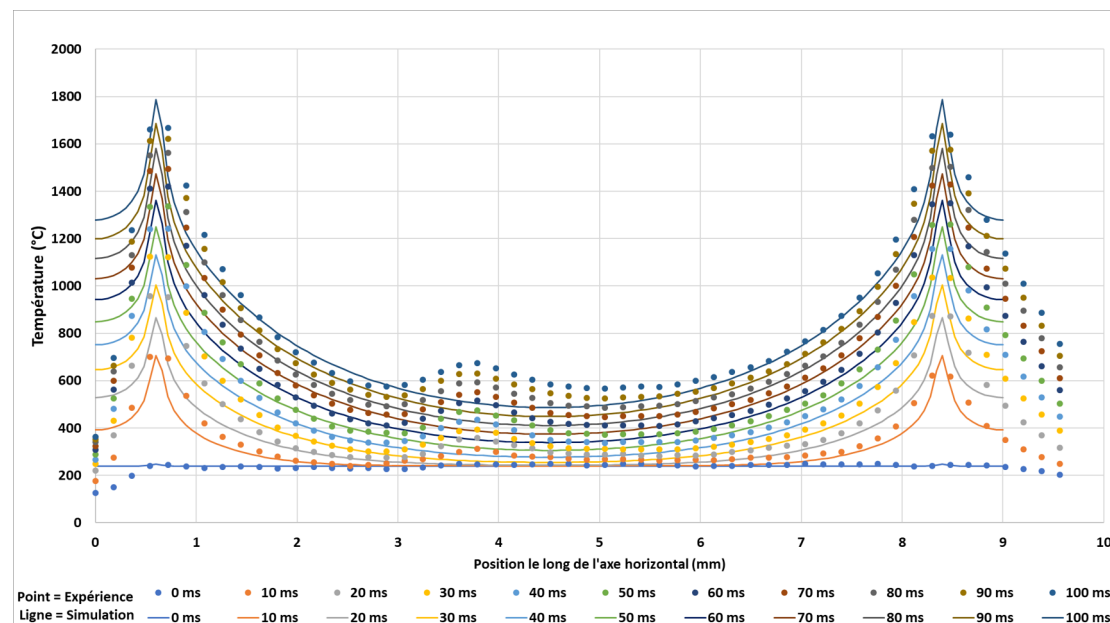


FIGURE V.32. – Profils thermiques (en $^{\circ}\text{C}$) à différents temps selon l'axe horizontal pour la chauffe de 1500 W pendant 100 ms. Les valeurs numériques sont désignées par S dans la légende (avec rapport=0%, $T_{ini} = 300^{\circ}\text{C}$, $\omega_{an} = 0,1 \text{ mm}$, $r_{an} = 3,9 \text{ mm}$ et $P_{laser} = 1500 \text{ W}$) et les valeurs expérimentales par H.

Deux informations principales peuvent être issues de ce graphique. Tout d'abord et comme pour la comparaison résultat/simulation de la première série c'est la limite du modèle sur les valeurs en périphérie, lié notamment à la non prise en compte du porte-échantillon. La seconde, plus favorable, est une excellente représentation des rampes et des pics et ce à tout instant.

En conclusion, malgré quelques difficultés qui ont pu être levées, nous tirons de ces expériences sur graphite un bilan très positif. Premièrement, elles nous permettent de valider le dispositif expérimental, tant pour la mise en forme du faisceau que pour sa capacité à atteindre en surface dans un temps bref des pics de température pouvant reproduire la thermique d'un RIA. Deuxièmement elles permettent de valider le modèle numérique, et sa capacité à prendre en compte la complexité du faisceau (rapport, r_{an} , ω_{an}) tout en prédisant le profil thermique à la surface de la pastille tout au long de la chauffe.

Le retour d'expérience de ces études nous a également permis d'identifier quelques améliorations à apporter pour les études sur UO_2 présentées par la suite. Le dispositif a par exemple été amélioré notamment pour une meilleure précision concernant l'alignement et l'inclinaison des optiques critiques pour la mise en forme du faisceau. D'autres améliorations ont été apportées, comme l'utilisation d'un hublot en BaF_2 et/ou en $ZnSe$, remplaçant le hublot en Ge , qui permettent d'atténuer fortement les artefacts liés aux reflets.

Ces dernières étapes franchies, l'objectif suivant est celui d'une chauffe reproduisant les conditions thermiques d'un RIA sur un échantillon d' UO_2 .

D. Application des concepts de chauffe RIA sur UO_2

L'ensemble des éléments de la configuration expérimentale a été décrit, étudié et finalement testé sur un matériau modèle. Le modèle numérique a également été confronté avec succès à l'expérience. La plateforme est donc apte à appliquer ces acquis sur l' UO_2 . Ainsi la suite de ce chapitre est consacrée tout d'abord à la présentation des échantillons d' UO_2 utilisés pour la calibration de l'instrumentation et lors des essais de chauffes annulaires. Ensuite nous présenterons le processus de nettoyage que nous réalisons sur ces échantillons et l'importance de cette étape. A la suite de cela, nous présenterons une sélection des chauffes réalisées sur l' UO_2 . Celles-ci seront discutées et confrontées aux simulations. Enfin des observations des échantillons suite aux chauffes seront présentées pour compléter cette partie.

D.1. Echantillons

D.1.a. Présentation des échantillons

La fabrication des échantillons d' UO_2 a eu lieu au laboratoire du Combustible Uranium (LCU) au CEA de Cadarache. Les pastilles y sont fabriquées selon un protocole industriel standard de métallurgie des poudres, c'est-à-dire par l'enchaînement d'une phase de granulage, de pastillage puis de frittage de poudre d'uranium appauvri [168]. Pour les besoins de la thèse, les pastilles obtenues sont ensuite découpées (scie à fil) et polies (par abrasion) pour obtenir des disques compatibles avec notre expérience.

Les échantillons d' UO_2 utilisés lors des travaux sont de deux types. Le premier correspond aux pastilles cylindriques proches des dimensions classiques de celles utilisées en centrale, à l'exception de leur hauteur qui est de l'ordre de la moitié d'une pastille standard. Un seul exemplaire de ce type a été utilisé afin de réaliser les premières calibrations à chaud (figure V.33). Le second type d'échantillon est dédié aux essais de chauffe annulaire, ce sont des tranches de pastilles fines. L'épaisseur de celles-ci varie entre 470 et 2050 microns (figure V.33). L'ensemble des échantillons et leurs dimensions est disponible dans le tableau II.

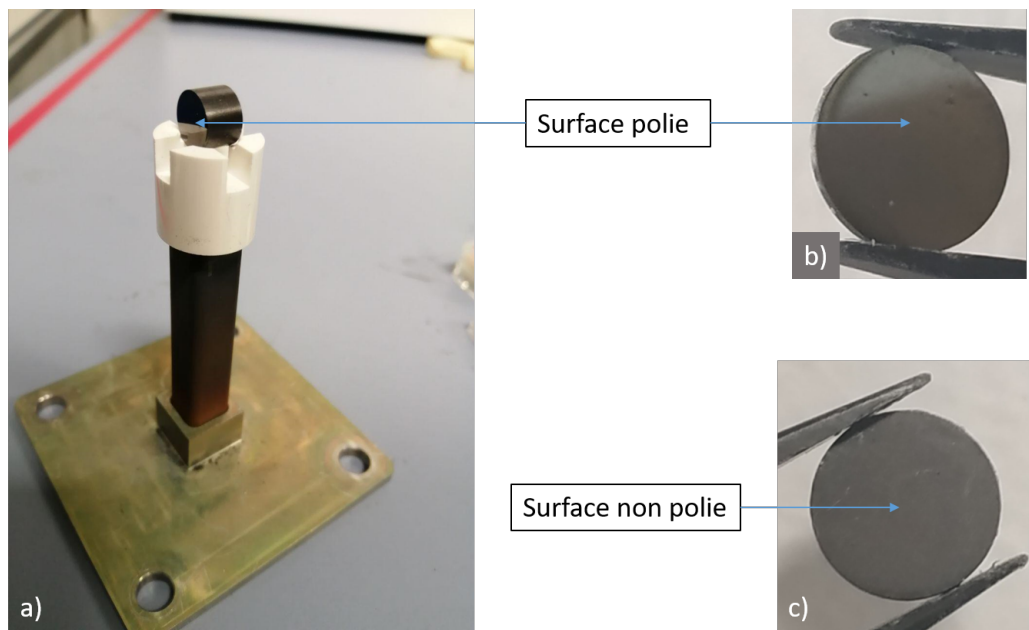


FIGURE V.33. – a) Photo d'une demi-pastille dédiée à la calibration. (b) et (c) : Photo de tranches de pastilles dédiées au scénario de chauffe annulaire.

Nous observons selon les échantillons des différences d'état de surface. Ceci est visible sur la figure V.33, avec en haut la photo de la face polie d'une tranche de pastille et en bas d'une face non polie. Nous ferons ainsi la distinction lors des calibrations entre les deux types de faces.

Nom de l'échantillon	Diamètre (mm)	Epaisseur (mm)	Masse (g)	Etat de surface des faces	Expérience
A7086 - β	8,8	6,2	3,498	Polies	Calibration à chaud
A7087-B	8	0,480	0,27	Mixte (1 face polie, 1 face brute)	Calibration à froid
A7087-C	8	0,490	0,27	Mixte	Calibration à froid
A7087-D	8	0,490	0,28	Mixte	Calibration à froid
A7087-E	8	0,680	0,383	Mixte	Calibration à froid + "Chauffe_RIA_1"
A7087-F	8	0,710	0,398	Mixte	Calibration à froid
A7087-G	8	0,820	0,476	Mixte	Calibration à froid + Pollution
Lot 2-7	8	0,940	0,543	Brutes	"Chauffe_RIA_Final"
Lot 2-8	8	0,970	0,563	Brutes	"Chauffe_Axicon"

TABLE II. – Tableau des échantillons d'UO₂ et de leurs caractéristiques

D.1.b. Nettoyage des échantillons

Lors des premiers essais de chauffe dans le porte-échantillon dédié au scénario de chauffe annulaire, nous avons constaté très vite (entre 200 et 600°C) un phénomène de pollution sur les optiques en saphir. Ce phénomène se caractérise par un dépôt blanchâtre comme observable sur la figure V.34.

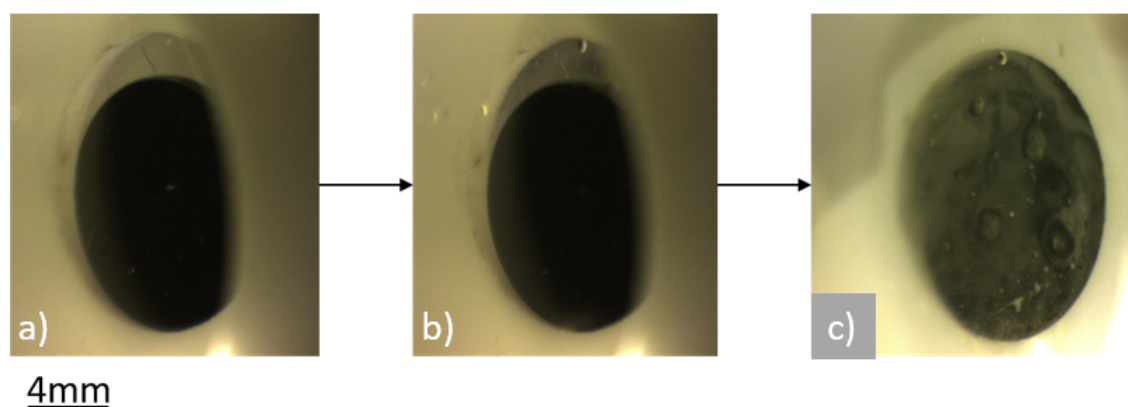


FIGURE V.34. – Effet de la pollution lors d'une chauffe de plusieurs minutes jusqu'à 600°C : à l'état initial (a), après quelques secondes/environ 200°C (b), et à l'état final à froid (c)

Les inconvénients de la pollution sont majeurs. Le dépôt altère la mesure pyrométrique, dégrade la qualité des images enregistrées, et peut présenter un risque grave pour la sécurité de l'expérimentation. En effet, la présence de dépôt absorbants peut provoquer un échauffement sous flux laser des optiques en saphir. Il était donc important de comprendre l'origine de cette pollution et y remédier.

Deux hypothèses vraisemblables sont rapidement apparues. La première était que la pollution venait de l'UO₂, l'échantillon pouvant avoir à sa surface des polluants liés aux procédés d'usinage ou de polissage. La seconde possibilité serait une origine liée à l'interaction saphir / UO₂ lors d'une chauffe. Après différents essais, la première hypothèse (pollution de surface de l'UO₂) s'est avérée la bonne. Nous avons donc défini une procédure de nettoyage de l'échantillon en le soumettant à une

chauffe de 30 min à 600°C sous vide (en pratique l'échantillon est placé dans un support en mousse de graphite et chauffé par laser). Aucune trace de pollution n'a été observée sur les optiques en saphir suite à cette étape de recuit/dépollution. Tous les échantillons utilisés dans la suite de ce chapitre ont été soumis à ce protocole de nettoyage constitué d'une chauffe de 30 min à 600°C sous vide. Nous n'avons pas réalisé d'étude pour identifier la pollution que ce soit sa composition, ou à quelle étape du procédé de fabrication/ d'usinage de l'échantillon elle est liée).

D.1.c. Mesure de la réflexion de l'UO₂

Nous avons étudié l'UO₂ de manière similaire au graphite EDM-3, c'est-à-dire que nous avons divisé l'étude des propriétés optiques du matériau en deux étapes, la première à froid avec un montage de spectrophotométrie utilisant une sphère intégrante et la seconde en chauffe avec l'instrumentation IR (caméras et pyromètres).

Les mesures de réflexion sur les faces non polies de 6 échantillons d'UO₂ dédiés à la chauffe annulaire (8 mm de diamètre et une épaisseur variant entre 480 et 820 µm) ont été effectuées à l'aide du montage de spectrophotométrie, dans une configuration similaire à celle détaillée dans la section C.1). Sur le graphique V.35 sont présentées les valeurs de réflexion pour un des échantillons testés en fonction de la longueur d'onde. Les valeurs obtenues pour le coefficient de réflexion entre 600 et 1000 nm à l'aide du montage spectrophotométrique indiquent une faible variation des coefficients optiques du matériau en fonction de la longueur d'onde. La valeur de réflexion moyenne sur l'ensemble des échantillons sur la gamme de longueur d'onde comprise entre 600 et 1000 nm est de 0,13.

Dans la partie bibliographique présentant les propriétés optiques de l'UO₂, nous avons utilisé pour la réflexion la valeur de Hongliang [121] (pour rappel : $R = 0,17 \pm 0,01$). Nous avons ensuite utilisé pour notre modèle numérique la formule reliant R (Eq.II.28), aux coefficients optiques du matériau (n et k) en utilisant leurs valeurs issues des publications de Bober, Singer et Wagner pour une longueur d'onde de 752,5 nm. La définition de la réflexion obtenue par cette seconde méthode permettait d'obtenir R en fonction de la température, avec une valeur à froid ($R = 0,185$) légèrement plus haute que celle calculée par Hongliang. L'écart relatif entre nos valeurs et celles issues de la bibliographie est assez important si nous comparons la valeur de 0,13 à celles de 0,17 ou de 0,185. L'état de surface peut éventuellement expliquer ces différences, mais il est difficile d'aller plus loin dans l'analyse car nous ne connaissons pas précisément les propriétés des échantillons étudiés dans les études citées.

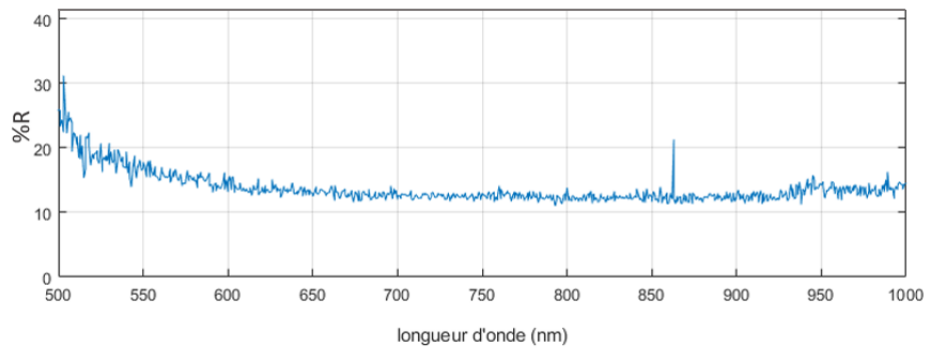


FIGURE V.35. – Réflexion diffuse de l'UO₂ en fonction de la longueur d'onde.

D.1.d. Calibration de l'instrumentation sur l'UO₂ à hautes températures

Pour la calibration de l'instrumentation sur l'UO₂ à chaud, la demi-pastille a été utilisée (diamètre : 8,8 mm et hauteur : 6,2 mm). Sur le schéma V.36 est présentée la configuration expérimentale, avec deux faisceaux lasers dirigés sur les faces planes de l'échantillon. Un pyromètre mesure la température au centre d'une des faces chauffées tandis que la caméra thermique observe la partie cylindrique sur le côté. La figure V.37 illustre cette configuration.

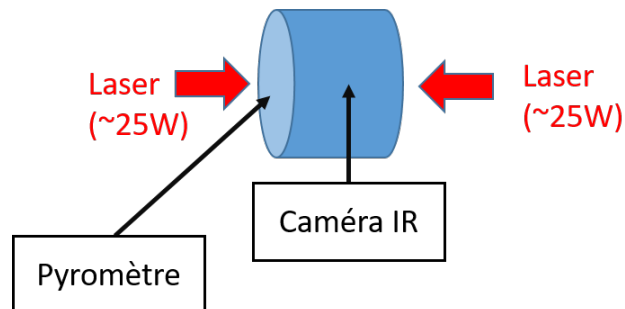


FIGURE V.36. – Schéma de la configuration de calibration

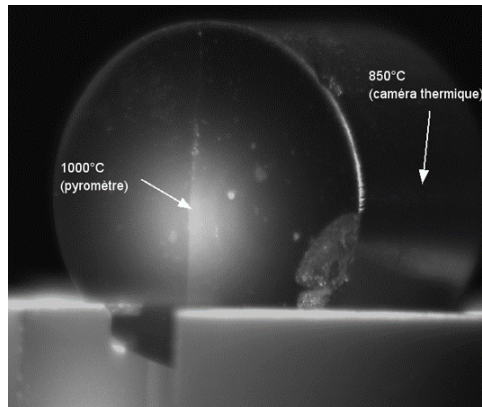


FIGURE V.37. – Photo de l'échantillon chauffé par le laser pendant la séquence de calibration

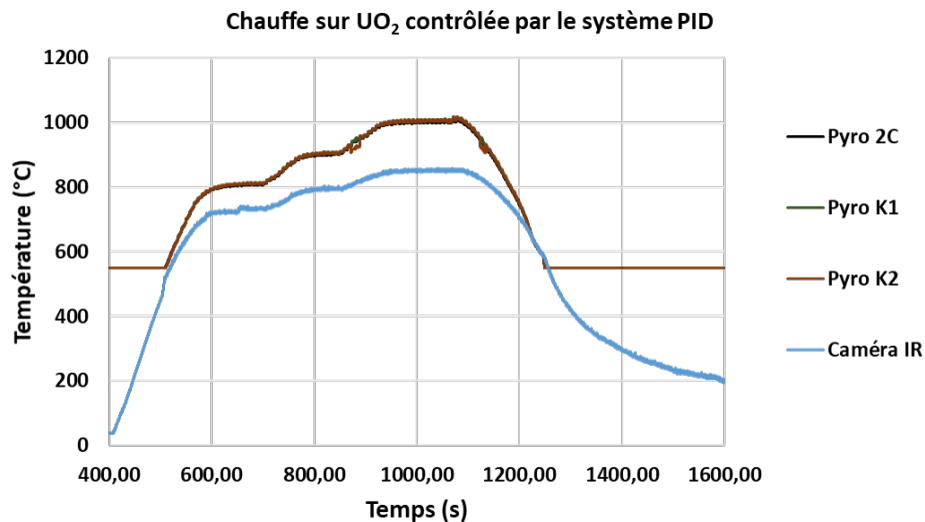


FIGURE V.38. – Exemple d'une chauffe régulée à 800, 900 et 1000°C. Le Pyromètre observe une face chauffée et la caméra IR observe le bord de la pastille.

Sur la figure V.38 nous présentons le cas d'une expérience avec trois plateaux à 800, 900 et 1000°C. A chaque plateau nous observons que les trois valeurs du pyromètre bichromatique (Pyro 2C, Pyro K1 et Pyro K2) se superposent parfaitement, un zoom du plateau à 1000°C est présenté figure V.39. La caméra thermique quant à elle observe la face cylindrique de la pastille. Les oscillations de températures à la surface de l'échantillon sont provoquées par les oscillations de puissance (envoyées par le laser et régulées par le système PID).

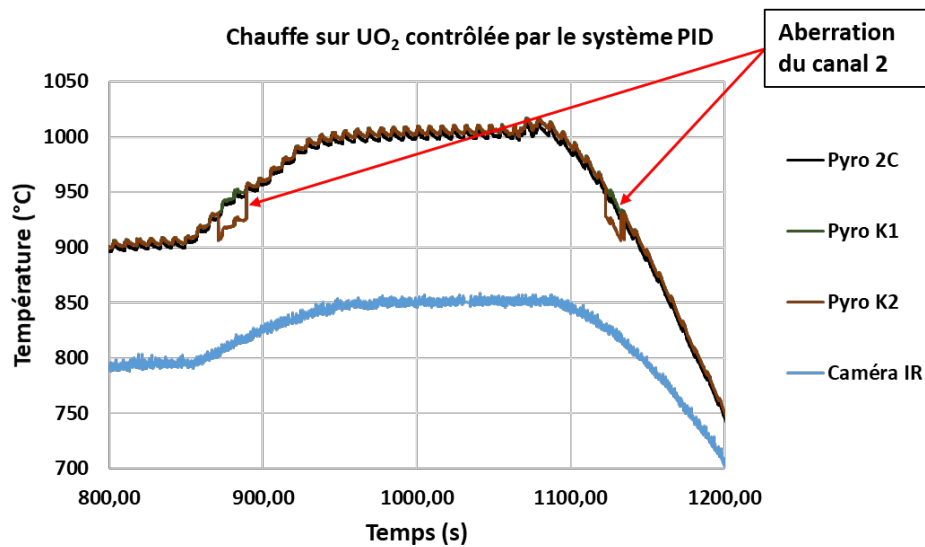


FIGURE V.39. – Zoom du graphique précédent

Les valeurs obtenues à l'issue des phases de calibration sont :

- Pour les pyromètres :
 - $\epsilon_{K1} = 0.85$
 - $\epsilon_{K2} = 0.85$
 - Pyro 2C = 1
- Pour la caméra thermique A-655sc : $\epsilon = 0.85$
- Pour la caméra thermique x8500sc : $\epsilon = 0.85$

Nous obtenons ainsi des valeurs d'émissivité non dépendantes de la longueur d'onde dans la gamme de l'infrarouge pour l'UO₂ et en accord à la littérature qui recommande une valeur de 0.85 ± 0.05 [113].

Les résultats de la chauffe de calibration sont également en accord avec notre modèle numérique. Le pyromètre et la caméra thermique indiquent des températures similaires aux températures calculées respectivement sur les faces planes et la partie cylindrique (figure V.40). C'est-à-dire 1000°C sur les faces exposées au laser, et environ 850°C sur la zone la plus éloignée de celle exposée.

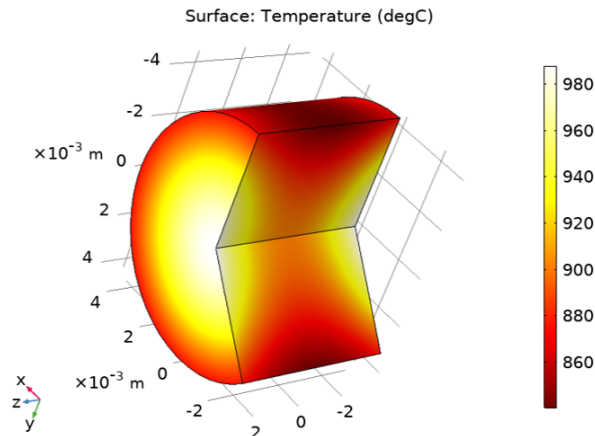


FIGURE V.40. – Représentation 3D obtenue par simulation de la chauffe de calibration

Cette étape de calibration est la dernière avant la réalisation d’une chauffe par laser visant à reproduire les gradients thermiques d’un RIA sur UO_2 .

D.2. Etudes expérimentales

Dans ce manuscrit nous avons décidé de présenter, parmi l’ensemble des expériences réalisées, trois séries d’essais qui nous paraissent les plus représentatives du travail effectué. La première correspondait à des essais préliminaires, sans mesure thermique, d’une chauffe annulaire sur UO_2 , dont l’objectif était de tester l’ensemble de la plateforme expérimentale en condition réelle (la résistance du porte-échantillon, l’imagerie visible d’une chauffe). La seconde et troisième série d’essais correspondent à ceux effectués en collaboration avec le CEA-Saclay et avec une configuration équipée de la caméra x8500sc. La seconde série est consacrée à la réalisation du scénario de chauffe annulaire. La troisième et dernière série d’essais présentée est dédié à l’étude des profils thermiques obtenus en fonction de la distance entre le dispositif optique de la forme de l’anneau de chauffage.

D.2.a. Essais préliminaires

L’objectif de cette série d’essais était de s’assurer du bon comportement lors d’une chauffe annulaire des derniers éléments non testés, à savoir, le porte-échantillon et plus spécifiquement les hublots en saphir et ce en condition critique : c’est-à-dire le cas d’une chauffe à haute température allant jusqu’à la fracturation de l’ UO_2 . Parmi les autres objectifs de cette série d’essais, les deux majeurs étaient la réalisation d’une chauffe annulaire sur l’ UO_2 et l’observation de celle-ci par une caméra rapide.

La gamme spectrale d’utilisation de la caméra A655sc, comme déjà spécifié, n’est pas compatible avec l’utilisation de hublots en saphir et n’a donc pas été incluse dans la configuration expérimentale (figure V.41). Cette configuration se compose

donc du dispositif de mise en forme du faisceau annulaire, d'une caméra rapide et d'un pyromètre (gamme de température 550-1400°C) visant le centre de la pastille et le centre de l'anneau (l'alignement a été réalisé de sorte que ces deux points soient confondus).

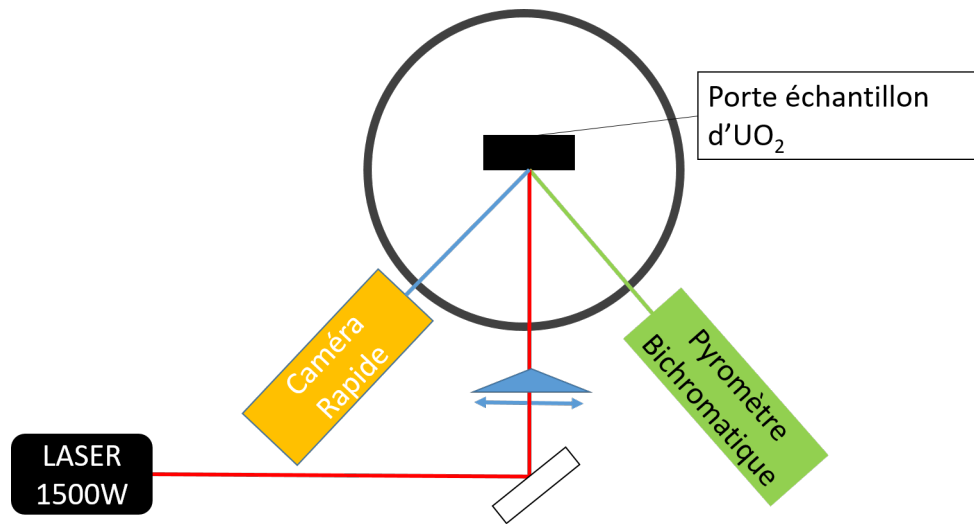


FIGURE V.41. – Schéma de la configuration utilisée pour les essais préliminaires

Sur la figure V.42, nous présentons une frise d'images obtenues lors d'une chauffe de 100 ms à 300 W et sans préchauffage de la pastille A7087-E. Sur la photo à $t = 10$ ms, la caméra visible capture un rayonnement thermique annulaire sur la pastille, avant de saturer. A $t = 40$ ms, nous observons un début de fracturation en bas à droite de la pastille, la fracturation va se répandre par la suite à l'ensemble de l'échantillon en suivant le tracé du faisceau annulaire. Le pyromètre utilisé visant le cœur de la pastille n'a pas mesuré de valeurs pendant la chauffe, signifiant ainsi que la température à cœur n'a pas atteint les 550°C et que l'ensemble de l'élévation thermique s'est effectué en périphérie de pastille. Des simulations correspondant à cet essai seront présentées ultérieurement (Sec D.3).

Sur la seconde image dans l'ordre chronologique, les 3 points "chauds" de lumière observés sont probablement des impuretés ou des poussières en contact avec le faisceau laser.

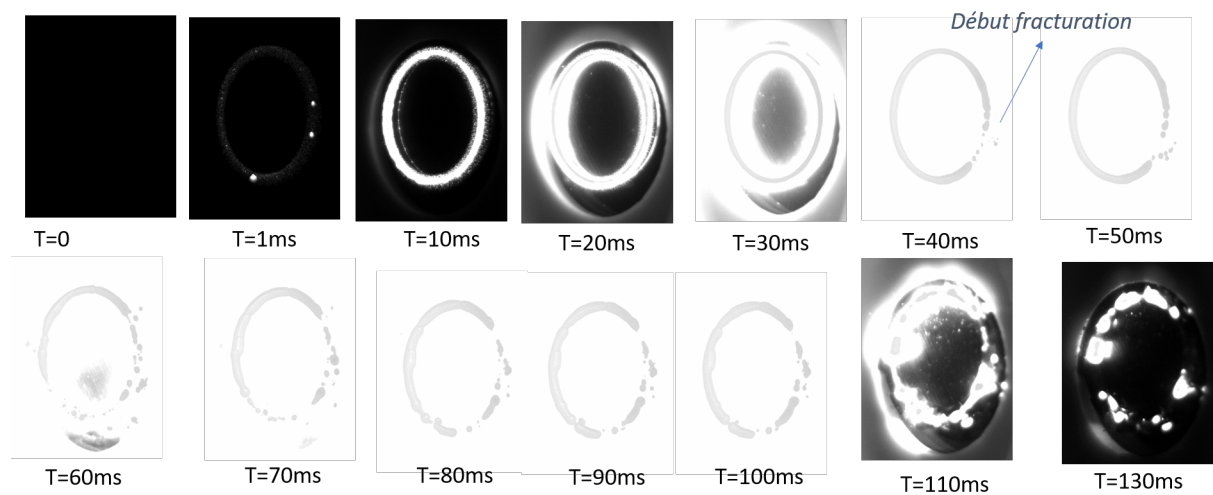


FIGURE V.42. – Observation du rayonnement thermique d’une chauffe de 100 ms à 300 W

Sur la figure V.43, nous observons à gauche la pastille après la chauffe, totalement fracturée sur sa périphérie et à droite le porte-échantillon et les hublots intacts assurant la non-dispersion des fragments de pastille. La figure de droite atteste de la bonne conception du porte-échantillon, et de sa fiabilité dans des conditions critiques.

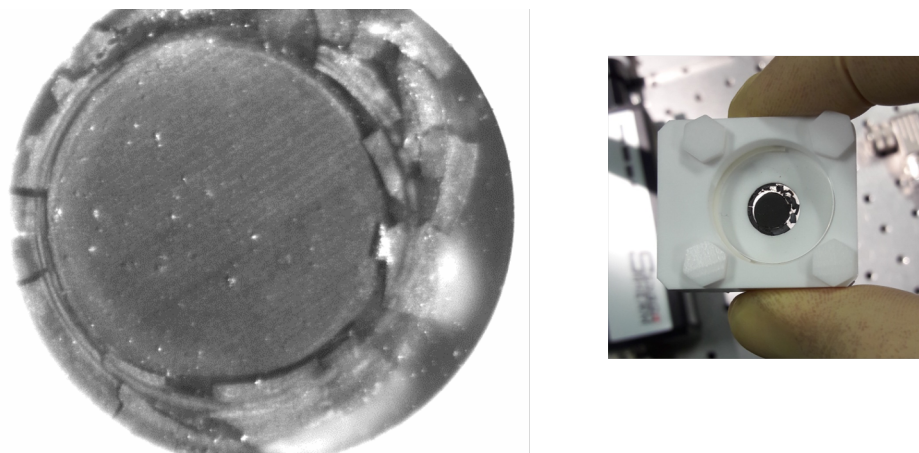


FIGURE V.43. – Photos du porte-échantillon et de la pastille après une chauffe de 100 ms à 300 W

Pour exploiter cet essai nous allons présenter une étude thermo-mécanique réalisée au CEA Cadarache en collaboration avec les équipes de modélisation du DEC/SESC, sur la base du modèle d’endommagement mécanique de MAZARS (un modèle numérique dédié à l’endommagement, usuellement du béton [169]). Les données thermiques obtenues seront quant à elles présentées dans la section

suivante (Sec D.3.a). La figure V.44 comporte deux représentations 2D de la pastille d'UO₂ à deux temps (10 ms et 40 ms). La représentation 2D supérieure est celle de la déformation de la maille suite aux contraintes thermo-mécaniques engendrées par la dilatation thermique de la zone chauffée. La seconde visualisation colorisée et légendée indique l'endommagement de l'échantillon sur une échelle théorique de 0 à 1. 0 représentant un endommagement nul et 1 une rupture dans le matériau. Ainsi des valeurs inférieures à 10⁻¹ (en bleu) sont révélatrices d'une absence de contrainte mécanique. Tandis que des valeurs supérieures indiquent une déformation élastique ou plastique du matériau et ce jusqu'à la rupture.

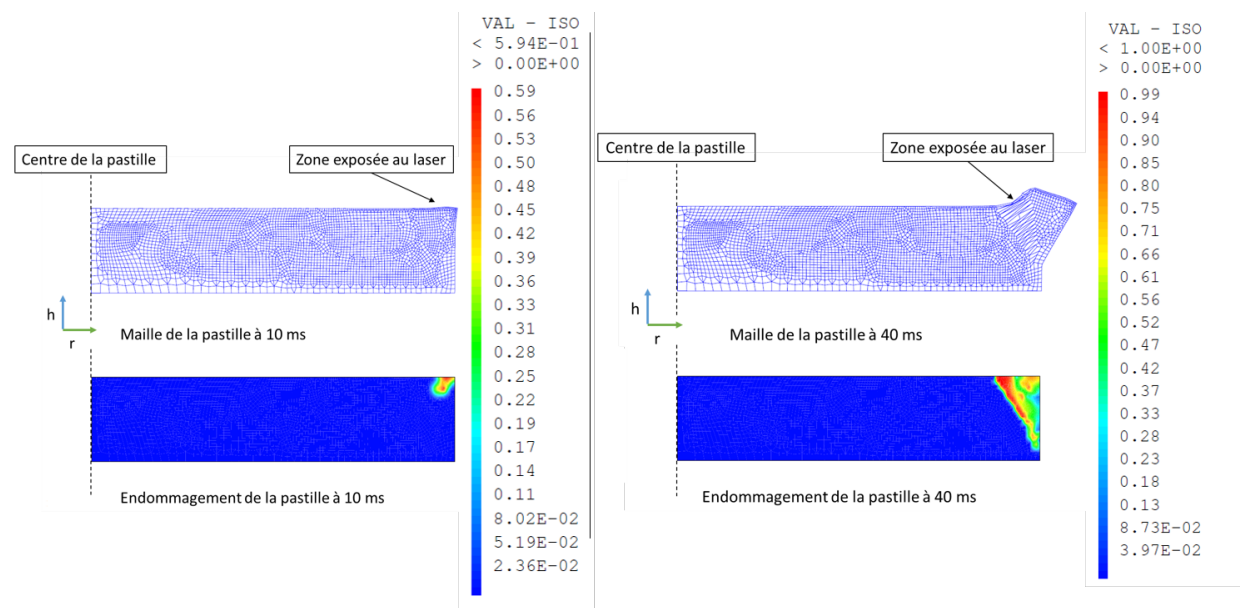


FIGURE V.44. – Simulation de l'endommagement de la pastille d'UO₂ à 10 ms (à gauche) et à 40 ms (à droite)

Dans le chapitre II, nous avons présenté les propriétés de l'UO₂, notamment les propriétés mécaniques (Sec B.4.b). Lors de la présentation du module de Young, nous avons noté que l'UO₂ était un matériau fragile, se déformant peu (avec un coefficient de dilatation de 2,5% à 2200 K), même sous de fortes contraintes, avant d'atteindre une rupture nette. Sur la figure V.44, nous observons une très légère déformation de la maille à 10 ms, au niveau de la zone exposée au laser. Une valeur d'endommagement assez importante de 0,59 sur une échelle de 0 à 1 est calculée. A t = 40 ms, sur la figure V.44 à droite, la valeur d'endommagement maximal de 1 est atteinte. Ceci est l'indication d'une rupture s'initiant dans la zone exposée au laser et se propageant dans l'épaisseur du matériau. La rupture est aussi visible par une extrême déformation du maillage. Ainsi d'après les simulations thermo-mécaniques effectuées à 40 ms, la pastille se fracture, ce qui correspond à l'observation expérimentale (voir figure V.42).

Ces simulations confirment le risque de fracturation sur un échantillon aussi fin.

Dans la suite de la thèse, les temps de chauffe seront au maximum de 40 ms afin de réduire le risque de fracturation.

D.2.b. Réalisation du scénario de chauffage annulaire sur les deux faces

Cette partie est consacrée aux expérimentations réalisées dans la configuration expérimentale la plus aboutie. La configuration met en jeu deux dispositifs optiques de mise en forme de faisceau annulaire (afin de réaliser un chauffage annulaire sur les deux faces), de la caméra x8500sc prêtée par le CEA-Saclay, du laser de préchauffe, d'un dispositif de visualisation pour aligner le faisceau sur la face avec la caméra thermique et d'un pyromètre pour contrôler la température avant l'impulsion (atteinte des conditions initiales). Le montage est illustré figure V.45 sous forme de schéma et figure V.46 en photo.

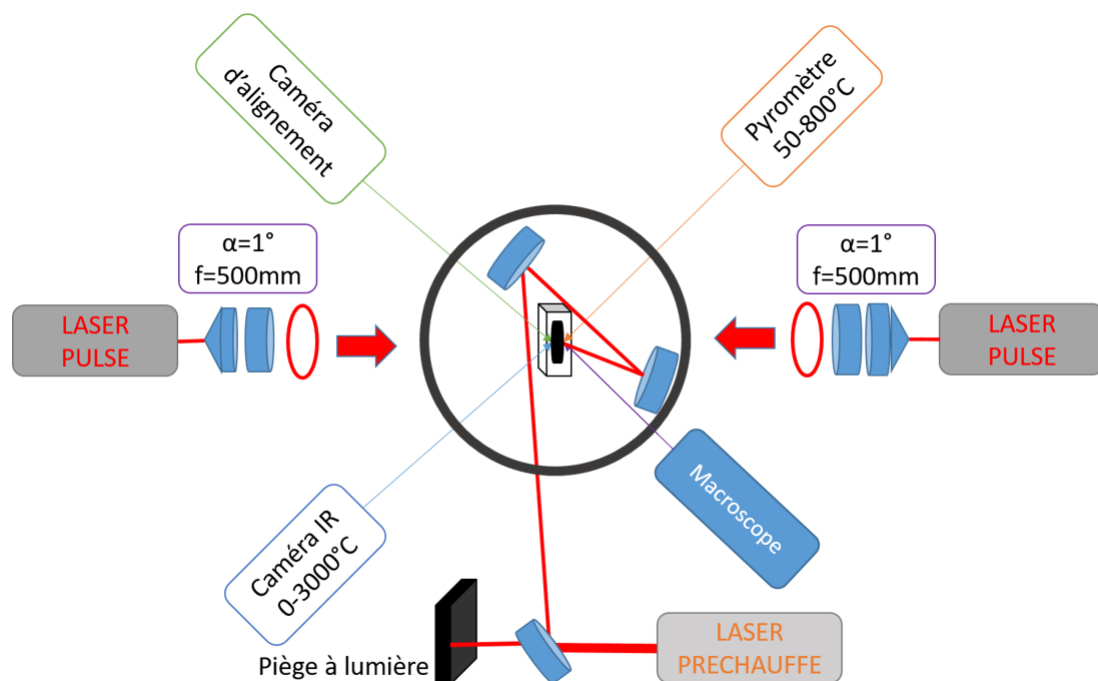


FIGURE V.45. – Schéma de la configuration double anneau plus préchauffage

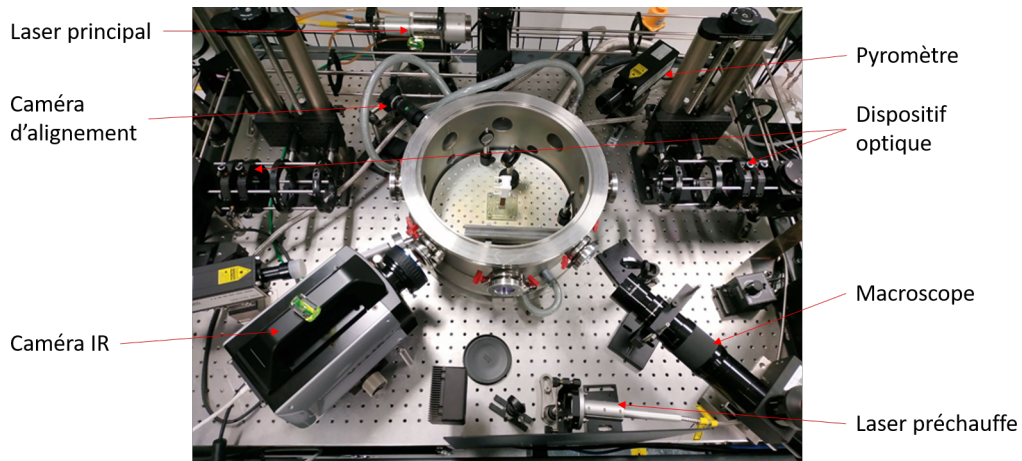


FIGURE V.46. – Photo de la plateforme expérimentale prête pour un scénario de chauffe annulaire

Les essais ont été réalisés sur la pastille de 8 mm de diamètre et 0,940 mm d'épaisseur. Cette pastille a l'avantage d'avoir les deux faces non polies, assurant ainsi le même comportement de chaque côté. Cette série d'essais se compose de chauffes de 20 ms, avec des puissances variant entre 150 W et 1200 W (avec un pas de 75 W) et avec une température initiale de 850°C. Nous présenterons uniquement les résultats de deux chauffes avec une puissance laser de 900 et 1200 W (figure V.48 et figure V.49).

La pastille a ainsi subi une vingtaine d'impulsions de différentes puissances à la suite sans retour à température ambiante, la pastille étant maintenue pendant toute la série à environ 850°C grâce au laser de préchauffe. Ce dernier délivrait une puissance constante (5 W) et n'était pas régulé. Après la dernière impulsion, la pastille présentait des traces liées aux impulsions laser mais n'était pas fracturée. Plus de détails seront fournis dans la suite de cette section.

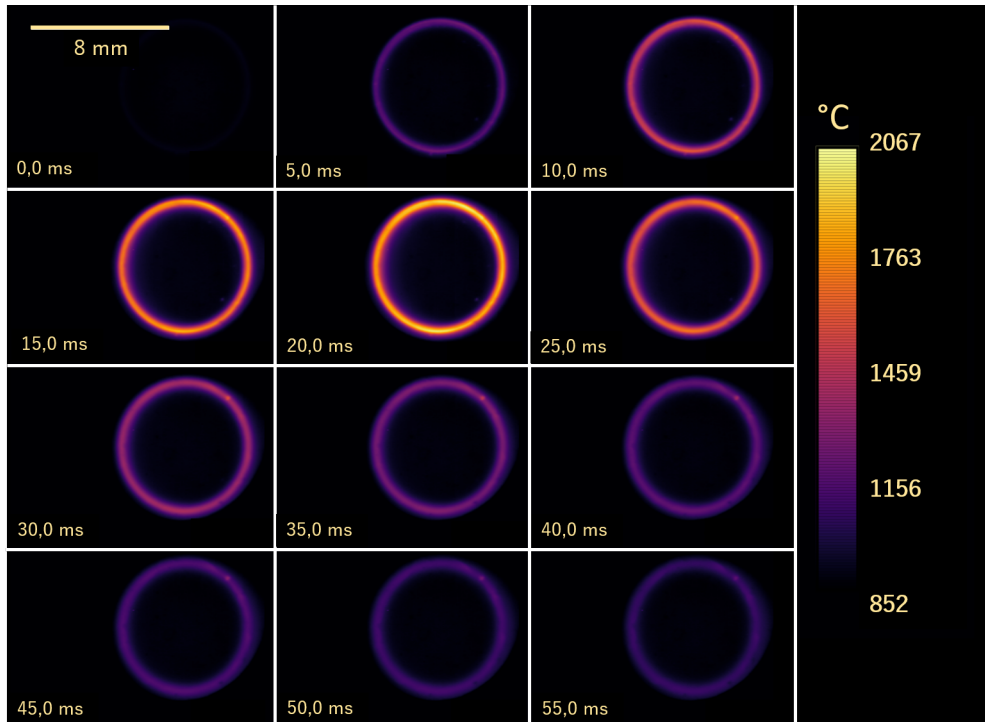


FIGURE V.47. – Mosaïque des images obtenues par la caméra thermique x8500sc d'une chauffe de 20 ms de 900 W avec une préchauffe de 850°C sur UO₂

Le graphique V.48 regroupe les profils thermiques mesurés à la surface de l'UO₂ par la caméra thermique à différents temps pour une impulsion de 20 ms à 900 W et avec une température initiale de 850°C. Nous observons deux pics de température entre 0 et 1mm et entre 7 et 8 mm. Ces deux pics atteignent leur maximum à 20 ms, pour une élévation de température de plus de 1100°C ($T_{max} = 1900^{\circ}\text{C}$), cela correspond à une rampe de plus de 50000°C/s. A cœur, l'élévation de température est quasi-nulle (la température augmente d'environ 5°C dans cette zone).

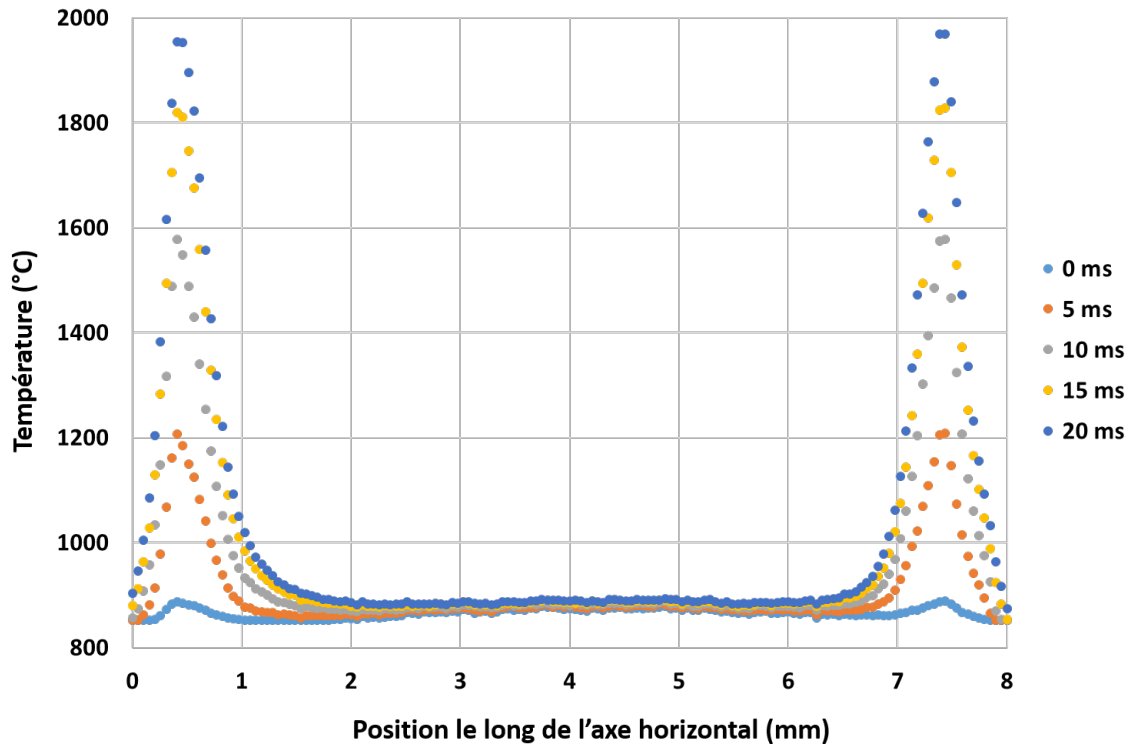


FIGURE V.48. – Profils thermiques à différents temps d'une chauffe de 20 ms à 900 W avec une préchauffe de 850°C sur UO_2

Le graphique V.49 présente un autre jeu de résultats pour une puissance laser de 1200 W (contre 900 W précédemment). Nous pouvons observer sur le graphique des résultats similaires au graphique précédent, avec une température initiale similaire, une température maximale quasi-identique et une non-élévation au centre de la pastille. Il est cependant à noter ici la présence de deux maxima à 2000°C à deux temps consécutifs (17,5 et 22,5 ms). Ne disposant pas de système de synchronisation liant la capture vidéo de la caméra IR et le $t=0$ de l'émission du pulse, le premier pic a été capturé pendant la phase de chauffe et le second juste après la fin de la chauffe, dans la phase de refroidissement. Nous avons donc encadré sans capturer le maximum de température à $t = 20$ ms. Ceci devra être pris en compte dans les simulations.

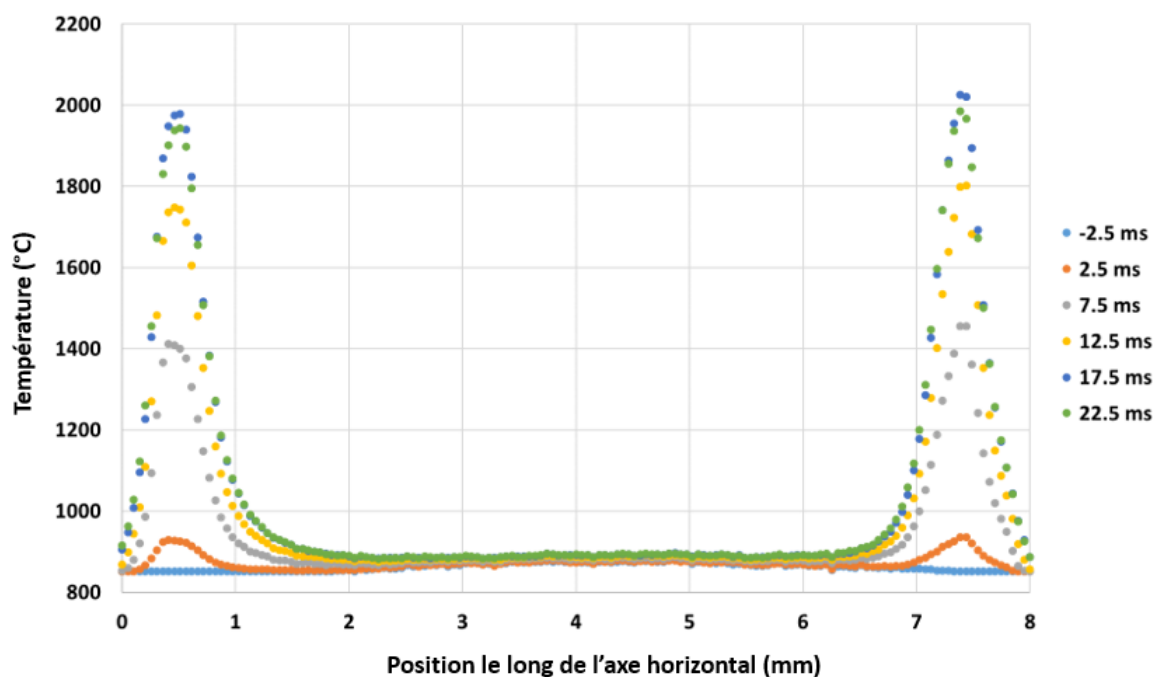


FIGURE V.49. – Profils thermiques à différents temps d'une chauffe de 20 ms à 1200 W avec une préchauffe de 850°C sur UO_2

Le graphique V.50 compare les profils thermiques des deux expérimentations présentées en amont. La position radiale des pics et leur épaisseur sont semblables ce qui indique une régularité et une répétabilité dans l'ensemble des éléments liés à la réalisation du scénario de chauffe annulaire. La hauteur des pics en revanche est différente, et s'explique par la différence de puissances utilisées et du temps auquel la mesure a été faite. Dans le futur il sera important de mettre en place un système de synchronisation des instruments.

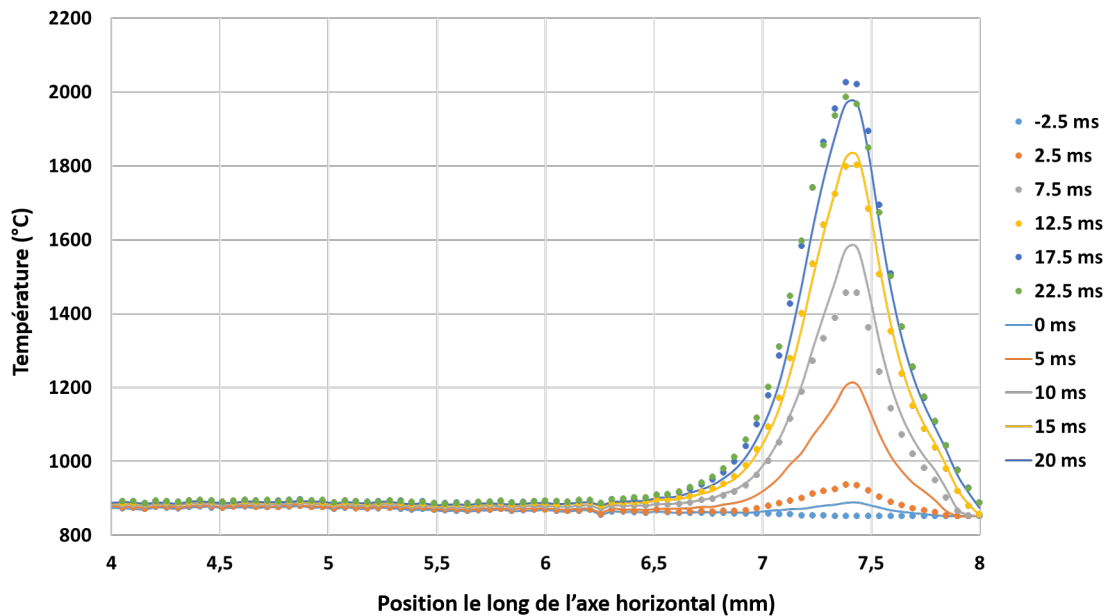


FIGURE V.50. – Comparatifs des profils thermiques pour deux chauffeuses de 20 ms de 900 W (la courbe continue) et 1200 W (la courbe en points) avec une préchauffe de 850°C.

Un des objectifs de la thèse était la réalisation d'une chauffe reproduisant les gradients thermiques typiques de RIA sur UO_2 . L'objectif fixé d'un point de vue thermique était d'atteindre en moins de 70 ms, une température de l'ordre de 2000 à 2500°C en périphérie de pastille tout en maintenant une température inférieure à 1000-1500°C à cœur d'échantillon. Les différentes séries d'expériences menées tant sur un matériau modèle que sur UO_2 valident le scénario de chauffe annulaire retenu et la possibilité d'utiliser un laser pour reproduire des rampes thermiques importantes sur l' UO_2 .

Nous avons aussi précisé que la pastille avait gardé son intégrité physique et ce malgré les conditions extrêmes subies. Sur la photo V.51, nous pouvons observer la pastille, les deux saphirs et le disque en zircone utilisés pendant la série d'essais. Nous observons l'intégrité de chaque élément, néanmoins une modification est visible sur les deux saphirs. Le premier, celui-du bas, présente une fine zone noircie et correspond à la face exposée à la caméra thermique et à la caméra d'alignement. Le second, en haut, correspond à la face non observée et exposée au laser de préchauffe, sur lequel nous constatons une zone noircie bien plus épaisse. Cette différence est probablement due à un problème d'alignement du faisceau et à une mise en forme du faisceau annulaire moins précise, en effet cette face n'a pas bénéficié des mêmes moyens d'observation (caméra IR et caméra visible) pour ajuster au mieux les dimensions du faisceau laser annulaire. Il s'agit donc également d'un point à améliorer dans le futur.



FIGURE V.51. – Photo de la pastille, des saphirs et de l’anneau en zircone après la série de chauffes type annulaire

Nous avons caractérisé par MEB plusieurs des échantillons ayant subi des chauffes annulaires. La figure V.52 est un exemple typique d’image que nous avons obtenue. Nous observons plusieurs éléments caractéristiques. Le plus important est la présence d’une empreinte du passage du laser, caractérisée par une différence de contraste avec le reste de l’échantillon (arc de cercle blanchâtre, aussi visible à l’œil nu, figure V.51). Nous observons aussi autour de cette trace de chauffe laser, l’apparition de grains d’ UO_2 d’une épaisseur micrométrique, ces grains ne sont peu ou pas visibles à cette échelle sur les zones non chauffées, témoignant d’un changement de structure. Enfin le dernier élément est la présence de lignes de fracturation, ces lignes peuvent être parallèles ou perpendiculaires au tracé du faisceau laser et témoignent des contraintes mécaniques importantes subies par l’échantillon. Ces lignes de fracturation suivent les joints de grains, comme nous pouvons l’observer sur le cliché de droite. Les expérimentations réalisées par laser sur l’ UO_2 non irradié ont donc des conséquences irréversibles et observables sur l’échantillon.

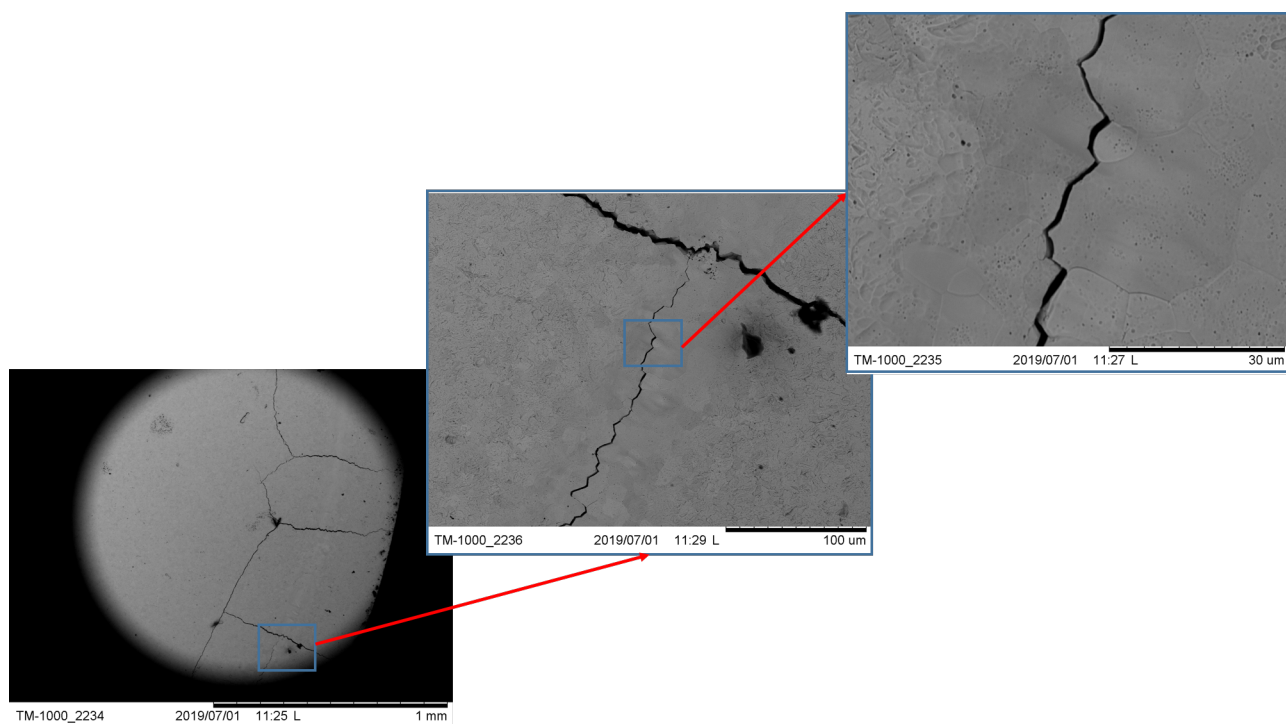


FIGURE V.52. – Images MEB de l'endommagement laser de la pastille d' UO_2 après une chauffe annulaire

D.2.c. Ajustement des gradients thermiques

Pour aller plus loin dans nos études, nous avons cherché à mieux maîtriser la forme du gradient de température. Pour cela, nous avons étudié l'effet de la variation de la distance de travail entre le dispositif de mise en forme optique du faisceau annulaire et l'échantillon d' UO_2 sur les gradients thermiques mesurés en surface de l'échantillon. A cette fin, nous réutilisons la configuration décrite précédemment, mais en ne chauffant que la face visible par la caméra thermique. Il n'est pas nécessaire de chauffer les deux faces pour cette étude et cela facilite l'expérimentation, en n'ayant qu'un seul faisceau à aligner (figure V.53).

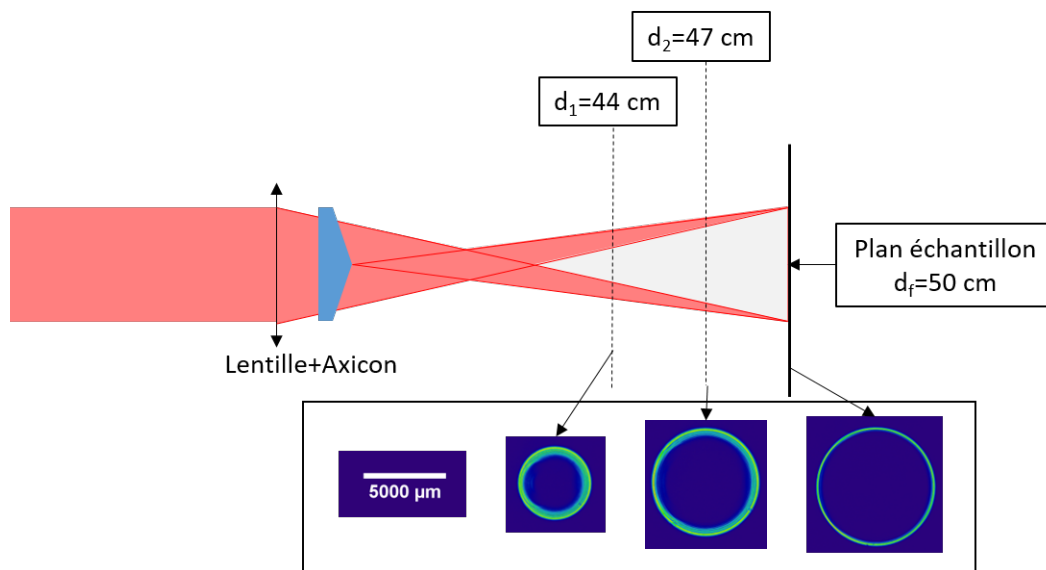


FIGURE V.53. – Schéma de principe présentant les différences d’anneaux en fonction de d , la distance de travail

Pour cette série, une pastille de 8 mm de diamètre et 970 microns d’épaisseur est utilisée et préchauffée à 550°C. Cette pastille a subi une série de chauffes de 20 ms à 300 W, avec une distance entre le dispositif optique et la pastille variant entre 44 et 50 cm. Nous présentons sur la figure V.54 les chauffes réalisées avec une distance de travail de 44 cm (en haut à gauche), 47 cm (en haut à droite) et 50 cm (en bas à gauche), cette dernière étant la chauffe de référence, correspondant à la distance focale de la lentille.

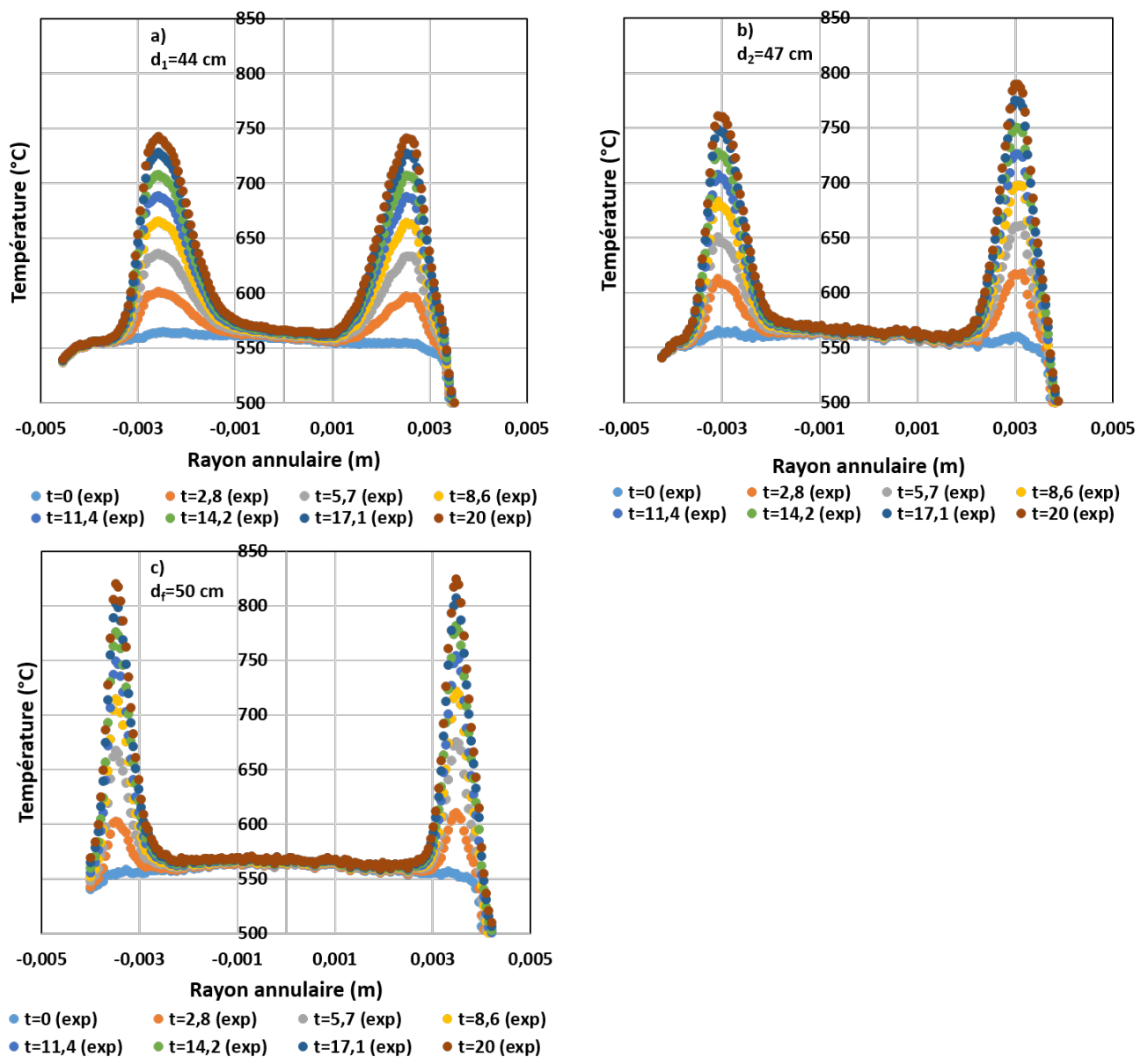


FIGURE V.54. – Comparatifs des profils thermiques obtenus pour trois chauffes de 20 ms à 300 W avec une préchauffe de 550°C. Les distances entre l'axicon et la pastille sont (a) 44 cm, (b) 47 cm et (c) 50 cm

Nous observons sur la figure correspondant à une distance de travail de 47 cm entre le dispositif de mise en forme annulaire et la cible une différence de hauteur entre le pic de droite et celui de gauche (respectivement 790 et 760°C). Cette différence est le résultat de ce qui est très certainement une erreur expérimentale d'alignement du faisceau et du dispositif optique. Cette erreur a provoqué une répartition du faisceau inégale. Le fait que le plateau de température à coeur de pastille (entre -0,002 et 0,002 m) apparaisse "penché" est sans doute une autre résultante d'un défaut dans

la répartition du faisceau de préchauffe. Les résultats sont résumés dans le tableau III, en présentant les caractéristiques du gradient de température annulaire : pics de température, rayon et largeur du gradient. Ces résultats expérimentaux montrent qu'il est assez simple de maîtriser les caractéristiques du gradient thermique en jouant sur la mise en forme du faisceau laser. Il sera cependant nécessaire pour aller plus loin dans cette voie de disposer d'une méthode permettant d'ajuster à la fois le diamètre et la largeur de l'anneau (en changeant simplement la distance de travail, ces 2 paramètres sont liés).

	Distance de travail (cm)	Température maximale (°C)	r_{an-th} (mm)	ω_{an-th} (mm)
Chauffe 1	44	750	2,55	0,74
Chauffe 2	47	775 (pic 1 : 790, pic 2 : 760)	3,02	0,6
Chauffe 3	50	825	3,5	0,45

TABLE III. – Tableau récapitulatif des expériences menées et des résultats associés.
 r_{an-th} : rayon du gradient thermique annulaire, ω_{an-th} : largeur du gradient

D.3. Confrontation Simulations/Expériences

Il est essentiel de disposer de simulations fiables permettant d'anticiper et d'interpréter les expériences. Dans cette section nous allons donc confronter les résultats obtenus expérimentalement à ceux obtenus par les calculs numériques COMSOL. Avant cela nous allons cependant comparer les modèles numériques ALCYONE/-Cast3m développé par le CEA et notre modèle développé sous COMSOL. Dans les simulations nous utilisons comme terme source l'équation d'un faisceau annulaire gaussien (Equations V.4 et V.5) avec comme données d'entrées les valeurs ω_{an} et r_{an} obtenues par profilométrie et P obtenue par calorimétrie.

D.3.a. Comparatif Comsol/ALCYONE

ALCYONE est le modèle de référence du CEA pour les simulations thermomécaniques sur combustible. Il est donc primordial de comparer les résultats de ce code de calcul à ceux obtenus par les modèles développés sous COMSOL pour répondre à notre besoin.

Dans le graphique V.55 nous comparons les résultats de simulations obtenus par les 2 codes de calcul pour une des chauffes présentées dans la section D.2.a.

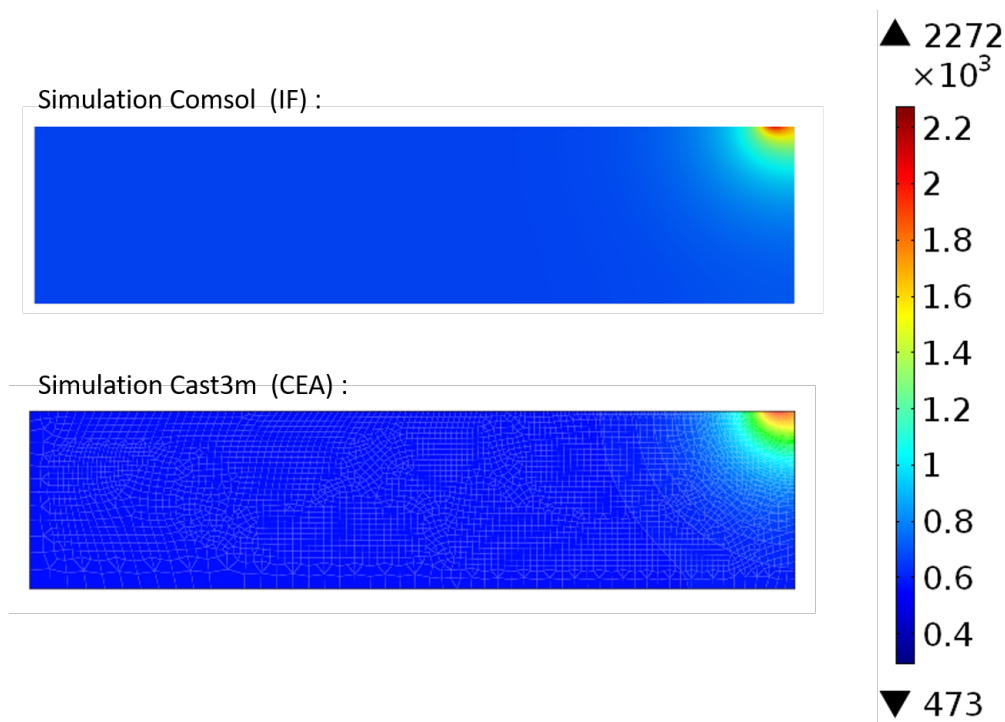


FIGURE V.55. – Comparatifs des modèles numériques COMSOL et ALCYONE pour une chauffe de 100 ms à 300 W à $t=100$ ms. Une demi pastille est représentée, le faisceau annulaire arrive par le haut. Les 2 cartographies de température sont mises à la même échelle de couleur.

La différence de température maximale à $t = t_{max} = 100$ ms entre les 2 modèles est d'une cinquantaine de degrés pour un maximum calculé de 2272°C , soit 2% d'écart. Pour d'autres configurations simulées, l'écart n'a jamais dépassé les 5%. Cet écart peut être expliqué par les différences de propriétés de l' UO_2 utilisées entre les deux modèles. En effet, si nos valeurs sont issues de la littérature disponible, le modèle Cast3m possède des propriétés internes au CEA.

D.3.b. Confrontation Simulation/Expérience sur le scénario de chauffage annulaire

Dans le graphique V.56 nous présentons les valeurs expérimentales obtenues lors de la chauffe de 900 W de 20 ms (détaillée dans la section D.2.b) et les valeurs numériques obtenues via COMSOL dans les mêmes conditions.

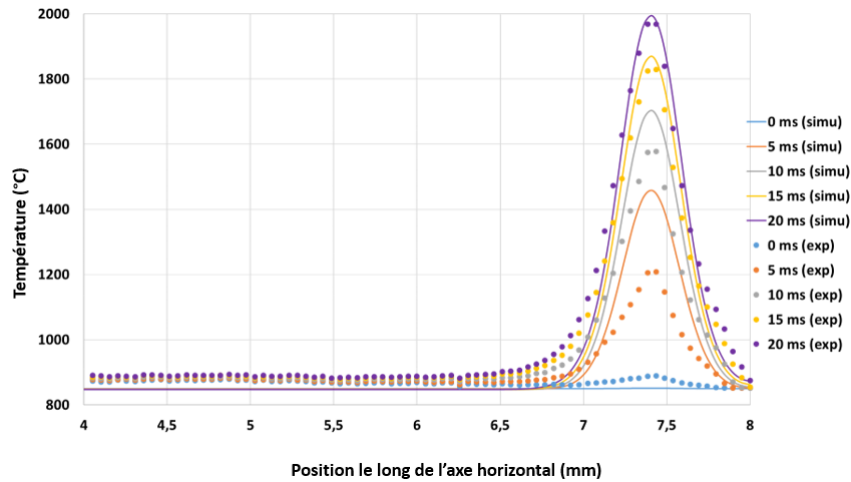


FIGURE V.56. – Comparatifs des profils thermiques pour une chauffe de 20 ms de 900 W avec une préchauffe de 800°C entre valeurs expérimentales et valeurs issues des simulations

Nous constatons sur les premiers temps (5 ms et 10 ms) un écart significatif des températures de pic entre les valeurs expérimentales (exp - courbe en pointillé) et numériques (simu - courbe lissée). Pour les séries de temps à 15 et 20 ms, sur la zone du pic de température (entre 7,2 et 7,6 mm) la correspondance entre les deux jeux de données est bien meilleure, avec une différence maximale d'une dizaine de degrés. L'une des explications envisagées pour expliquer une telle évolution est l'incertitude sur les temps expérimentaux que nous estimons à moins de 5 ms (une image étant prise toute les 5 ms). Sur des chauffes pulsées, l'élévation de température est extrêmement rapide. A $t=10$ ms, nous relevons que la température (simulée ou mesurée) est déjà de 1600°C, avec une température initiale à $t=0$ ms de 800°C, tandis que de $t = 10$ ms à $t = 20$ ms, le pic de température évolue de 1600°C à environ 2000°C. C'est donc dans les premières millisecondes de la chauffe que se situe la part la plus importante de l'augmentation de température. Ainsi une incertitude aussi grande sur le temps de la mesure ne permet pas de comparer avec satisfaction les valeurs expérimentales et simulées.

En gardant une réserve sur les valeurs à $t=10$ ms, les autres jeux de données montrent une correspondance satisfaisante sur la zone du pic de température (ici, entre 7,2 et 7,6 mm). Au-dessus de 7,6 mm et en deçà de 7,2 mm (c'est-à-dire au niveau des pieds de la gaussienne), nous observons que ces zones qui sont à la limite de l'exposition du laser, présentent une variation de comportement entre les valeurs simulées et mesurées. Sur la bordure externe, ces observations rejoignent celles effectuées sur le graphite (par exemple figure V.32) et que nous avons attribuées à la non prise en compte de l'interaction échantillon/porte-échantillon. Sur la partie interne il est très probable que le faisceau laser ne puisse pas être décrit par une gaussienne parfaite. Ceci est par exemple tout à fait visible sur la figure V.19 présentant un profil de faisceau réel. Une prise en compte plus rigoureuse du

profil d'intensité serait donc nécessaire pour améliorer l'accord théorie/expérience. L'enjeu majeur des simulations était cependant de décrire correctement l'élévation de température sous flux laser. A cet égard, la confrontation entre les valeurs simulées et mesurées est satisfaisante. Nous disposons donc d'un modèle capable de simuler et prédire les gradients et dynamiques de température pour dimensionner les puissances laser et les dimensions d'anneaux optimales pour reproduire les gradients thermiques les plus représentatifs d'une chauffe RIA par laser en laboratoire.

Cette confrontation validant un bon accord entre les valeurs mesurées et calculées pour une chauffe à haute puissance atteignant 2000°C, nous allons plus loin dans la partie suivante avec une confrontation simulation/expérience pour des chauffes de puissances plus faibles mais avec des dimensions d'anneaux variables.

D.3.c. Confrontation Simulation/Expérience sur l'étude des différentes tailles d'anneaux

Dans cette partie, nous réutiliserons les résultats expérimentaux obtenus et décrits dans la section [D.2.c](#) en les comparant aux valeurs numériques du modèle COMSOL. Ces comparaisons sont présentées Figure [V.57](#).

Nous observons pour les différents cas traités un très bon accord simulation et expérience. Un écart est visible pour les pics de température pour une distance de travail de 47 cm (Sec [D.2.c](#)), avec une valeur du pic simulé proche de la moyenne des valeurs expérimentales, le déséquilibre des valeurs expérimentales étant lié à un problème lors de la mise en forme du faisceau. L'écart de valeurs de température aux pieds de la gaussienne observé dans la section précédente est toujours présent. Ce phénomène s'accroît en s'éloignant de la distance focale (50 cm), ce qui souligne l'importance de bien caractériser et connaître la répartition d'intensité du faisceau laser.

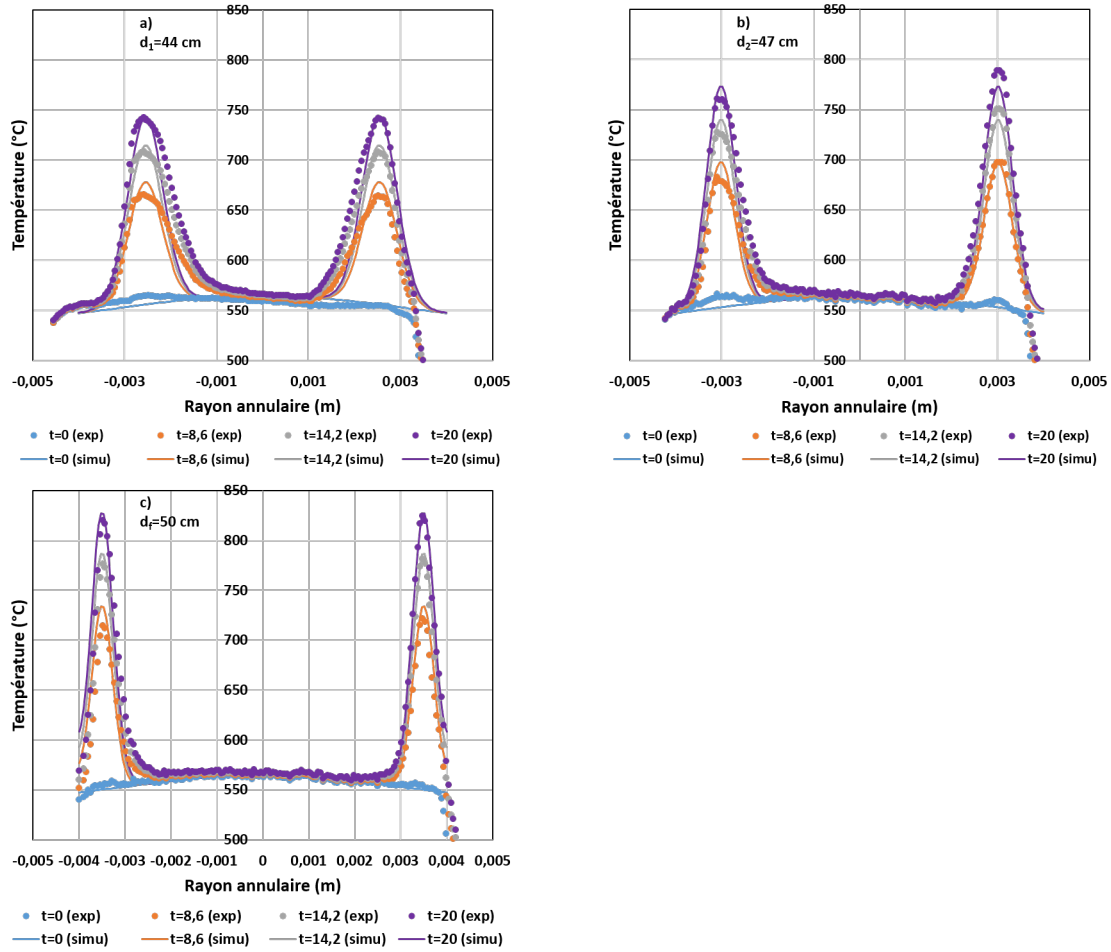


FIGURE V.57. – Comparatifs des profils thermiques pour trois chauffes de 20 ms de 300 W avec une préchauffe de 800°C avec une distance entre l'axicon et la pastille, de gauche à droite, 44, 47 et 50 cm

E. Conclusion

Lors de ce chapitre, nous avons présenté différentes techniques permettant la mise en forme d'un faisceau annulaire, et présenté la solution retenue se basant sur l'utilisation d'un axicon. Nous avons consacré la suite du chapitre aux expériences sur le graphite EDM-3 qui ont permis de valider les concepts de chauffes, l'instrumentation, et le modèle numérique de support aux expériences. Finalement des chauffes laser avec un faisceau annulaire ont été réalisées sur l' UO_2 avec l'objectif d'obtenir sur un temps court (typiquement entre 10 et 100 ms) une température maximale de 2000°C en périphérie tout en minimisant l'élévation à cœur de pastille. Nous avons également aussi étudié la possibilité de varier les dimensions de l'anneau laser pour maîtriser les gradients thermiques. Cela se révélera très utile pour l'application au CEA de la version suivante de la plateforme expérimentale. Enfin nous

avons confronté nos résultats expérimentaux aux valeurs calculées par COMSOL et avons constaté un accord qui correspondait à nos objectifs et répondait au besoin de dimensionner et étudier correctement l'interaction entre le laser et l' UO_2 pour reproduire les gradients thermiques d'un RIA. Le modèle COMSOL a aussi été confronté au modèle du CEA avec succès. Ainsi chacun des outils développés pendant cette thèse a été l'objet de plusieurs vérifications permettant d'offrir une crédibilité à l'ensemble du scénario proposé.

Malgré le succès des expériences démontrant la capacité de la plateforme et du dispositif à reproduire via une chauffe laser les gradients thermiques d'un RIA sur UO_2 , le chemin à parcourir pour maîtriser parfaitement ces expériences et les reproduire sur du combustible irradié est encore long. Nous avons notamment souligné au long de ce chapitre un certain nombre de points à améliorer : soin à apporter à l'alignement et au réglage du faisceau laser annulaire, choix des optiques de mise en forme, "propreté" des échantillons à maîtriser, caractérisation précise de la répartition d'intensité, etc...

Conclusion

Le travail de cette thèse s'est focalisé sur l'étude de l'interaction Laser/ UO_2 avec pour objectif principal de reproduire le chargement thermique subi par le combustible nucléaire en REP lors d'un accident de réactivité (RIA) et ce à l'échelle d'un laboratoire, conférant ainsi un caractère original à ce travail. Pour l'atteindre, nous avons travaillé sur plusieurs étapes intermédiaires. La première était une étude de faisabilité par l'intermédiaire de simulations numériques pour déterminer des scénarios envisageables et dimensionner la plateforme expérimentale correspondante. Après avoir développé ce dispositif expérimental, nous avons ensuite travaillé sur un matériau de substitution (le graphite EDM3) pour éprouver l'ensemble du protocole de tests et les calculs numériques. Enfin la dernière étape a été la réalisation d'essais sur UO_2 vierge et la confrontation de ces résultats aux simulations. La première partie de ce travail de thèse s'est donc appuyée sur la littérature relative aux RIA et l'application des techniques lasers dans le domaine des combustibles nucléaires irradiés. Nous avons présenté les caractéristiques clés d'un point de vue thermique d'un accident RIA : la rapidité du phénomène (entre 10 et 100 ms), la localisation du phénomène (une élévation de température homogène dans la hauteur de la pastille mais avec un pic de température en périphérie entre 3,5 et 4 mm de rayon), le gradient de température (environ 1000°C à $t = 0$ s et 2000°C à la fin du pulse). Compte tenu de ces caractéristiques, le dépôt de puissance contrôlé par laser est alors apparu comme une technique particulièrement pertinente pour reproduire ces conditions thermiques. Nous avons montré également que ces techniques lasers avaient un fort potentiel dans le domaine des combustibles nucléaires en passant en revue leurs applications : mesures de propriétés thermiques, tests mécaniques, procédés lasers. . . . Sur ces bases nous avons cherché à déterminer des scénarios envisageables pour reproduire les caractéristiques thermiques principales d'un RIA à l'aide de chauffage par laser d'échantillons d' UO_2 . Deux d'entre eux ont été retenus. Le premier se focalise sur l'utilisation d'une pastille pleine et un dépôt de puissance homogène sur la périphérie. Le second se concentre sur une reproduction plus fidèle des gradients thermiques d'un RIA en travaillant sur une tranche de pastille et la possibilité d'intégrer la gaine en Zircaloy aux essais. Ce deuxième scénario a été retenu pour la partie expérimentale de la thèse. Une plateforme d'essais basée sur un laser de puissance a alors été conçue et développée. Nous avons tout d'abord dimensionné et approvisionné (et/ou fabriqué) la chambre expérimentale, les porte-échantillons, la ligne de circulation des gaz, la mise en forme des faisceaux, En parallèle, nous avons instrumenté la plateforme de caméras thermiques et pyromètres pour les mesures de température, en ayant au

préalable mis au point des procédures de calibration de ces instruments. Pour qualifier cette plateforme et valider les scénarios envisagés, nous avons travaillé sur un matériau modèle, le graphite EDM-3, qui tout au long de la thèse, a été utilisé au préalable comme matériau de substitution à l' UO_2 et avec lequel nous avons pu réaliser des expériences jusqu'à des températures supérieures à 3000°C . Les travaux ont validé la capacité de la plateforme à réaliser des chauffes contrôlées avec un suivi de la température très précis. Par ailleurs, les valeurs obtenues expérimentalement ont été confrontées avec un bon accord aux valeurs issues du modèle numérique. Le point final de cette étape de préparation a été la confrontation très satisfaisante des essais de chauffe type RIA sur EDM-3 au modèle numérique du scénario 2. Cela a confirmé notre capacité à simuler l'interaction entre cette géométrie de chauffe par laser et un matériau. Dans la dernière phase de la thèse, nous nous sommes focalisés sur les études sur l' UO_2 , dont nous pouvons tirer le bilan suivant :

- L'approche proposée permet de reproduire les gradients thermiques caractéristiques d'un RIA, sous réserve que l'échantillon soit suffisamment fin ($<0,5$ mm typiquement).
- Le modèle numérique développé permet de reproduire très fidèlement les observations expérimentales et s'avère être un outil extrêmement utile pour préparer et interpréter les essais.
- L'état de surface des échantillons et la connaissance des propriétés optiques sont cruciaux pour maîtriser la chauffe (absorption à la longueur d'onde du laser) et obtenir des données fiables (émissivité aux longueurs d'onde des capteurs).
- La mise en forme du faisceau et son alignement sont critiques, ce qui nécessitera des améliorations dans le futur pour déployer ce système hors d'un laboratoire d'optique.

Le bilan de ces travaux, qui portait sur un sujet exploratoire, est tout à fait positif. Nous avons pu démontrer la pertinence et la faisabilité de cette approche, ce qui était l'objectif de la thèse : simuler par chauffage laser le chargement thermique d'un RIA à l'échelle du laboratoire. Ces travaux ne s'achèvent pas avec cette thèse. Au contraire, elle a permis d'ouvrir de nouveaux axes de recherche entre les équipes de l'Institut Fresnel et du CEA/IRESNE, mais aussi avec celles du CEA/DAM, du JRC-Karlsruhe, de l'ENSAM et de l'IRFM. Ci-dessous sont proposées quelques perspectives issues de ce travail de thèse :

- Un projet d'intégration sur le long terme d'une plateforme similaire dans un laboratoire de haute activité a été lancé au CEA-Cadarache, pour pouvoir travailler sur des matériaux irradiés. A plus court terme une version intermédiaire en boîte à gants au sein du laboratoire UO_2 (CEA/Cadarache) est en développement au CEA pour travailler sur de l' UO_2 enrichi (plateforme CHARTREUSE). Ces deux plateformes, associées à celle en opération à l'Institut Fresnel ont fait l'objet d'une demande de financement à l'appel à projet Equipex+/ESR en 2020.
- Les développements futurs s'appuieront d'une manière générale sur des travaux

amonts réalisés à l'Institut Fresnel, notamment dans le cadre d'une nouvelle thèse lancée sur ces thématiques. L'objectif est notamment d'obtenir une meilleure connaissance des propriétés optiques de l' UO_2 , matériau pour lequel nous avons mis en évidence le manque de données dans la littérature. Il s'agira également de fabriquer et caractériser des échantillons d'intérêt pour ces expériences afin d'appréhender le comportement du matériau en conditions de RIA : UO_2 dopés ou non en PF gazeux avec différentes microstructures pour effectuer des études paramétriques de l'influence de la taille des grains de la zone saine ou restructurée de la pastille, des PF gazeux, des cavités pressurisées ou non . . . sur la décohésion des joints de grains et la fragmentation du combustible et leurs conséquences sur le Relâchement des Gaz de Fission.

- En outre la plateforme offre la possibilité d'étudier aussi les propriétés thermophysiques (telles que température de liquidus/solidus, diffusivité, etc . . .), ce qui permet d'envisager d'autres perspectives avec la mise en place de méthodes « flash laser » telles que nous les avons décrites dans l'état de l'art sur le sujet pour améliorer la connaissance sur les échantillons étudiés.

ANNEXES

A. Propriétés de la Zircone, du Zircaloy et du Saphir

A. Zircone

La zircone, qui est le nom courant du dioxyde de zirconium, ZrO_2 , possède plusieurs propriétés qui rendent ce matériau d'intérêt pour une application comme porte-échantillon sur notre plateforme expérimentale. Avant de décrire ces avantages, il est important de clarifier quelles sont les conditions d'utilisation envisagées en tant que porte-échantillon sur l'expérience. La pièce, étant au contact de la pastille d' UO_2 , doit pouvoir être utilisée à de hautes températures (environ $2000^\circ C$) sans s'endommager, être stable chimiquement pour ne pas réagir avec l'uranium. De plus, le matériau doit être suffisamment isolant thermiquement, pour permettre aussi aux autres pièces de résister aux élévations de températures. Enfin sa résistance mécanique en compression doit être suffisante, pour ne pas rompre sous l'effet de la dilation de la pastille d' UO_2 .

Ainsi la zircone est une céramique réfractaire¹ qui peut être stabilisée par de l'oxyde d'Yttrium Y_2O_3 . Elle est utilisée régulièrement pour deux types d'usages. Le premier comme isolant pour des utilisations dans des gammes de températures extrêmes, le second en médecine, comme implants, pour sa résistance à l'usure, à de fortes pressions, sa longévité et pour sa stabilité chimique, c'est-à-dire être inerte avec d'autres espèces chimiques. Plusieurs de ces caractéristiques sont dues au fait que la structure cristalline de la zircone est stabilisée sous forme cubique, qui permet au matériau d'avoir des liaisons covalentes et ioniques. Les premières, les liaisons covalentes, sont aussi appelées liaisons fortes ; ce sont elles qui donneront à la céramique ses propriétés mécaniques. Les secondes, les liaisons ioniques sont les responsables de son inertie chimique (résistance à la corrosion). Enfin les oxydes ioniques, tels que le ZrO_2 mais aussi l' Al_2O_3 , ont des températures de fusion élevées.

Ci-dessous seront présentées les propriétés de la Zircone stabilisée par Yttrium (nommé Zircone Yttria Tetragonal Zirconia Polycrystal (Y-TZP) ou plus simplement Yttria Stabilized Zirconia (YSZ)) lorsque la littérature le permet, sinon les propriétés de la Zircone simple seront utilisées. NIST-Janaf Thermochemical Tables - Fourth Edition [172] est un handbook contenant les propriétés thermiques de base. Pour les

1. Selon les normes, ISO/R836 (ISO [170], est l'organisation internationale de normalisation) et AFNOR NF B 40-001 (AFNOR [171], est un système de normes français), un matériau est dit réfractaire s'il peut résister à plus de $1500^\circ C$ sans se déformer sous son propre poids.

propriétés mécaniques, la base de données MPDB - Material Properties Database - qui est incluse dans le logiciel COMSOL a été utilisée. MPDB décrit les dites propriétés en fonction de la température. La bibliothèque de matériau est très riche, celui sélectionné se nomme " $\text{ZrO}_2 - 3\text{Y}_2\text{O}_3$ " et correspond à de la zircone stabilisée avec un ratio de 3% d'oxyde d'Yttrium. Enfin les autres propriétés sont issues du CRC - Handbook of Chemistry and Physics [173], du Thermophysical properties of matter - Volume 10 - Thermal Diffusivity [174] et, pour les propriétés optiques, d'articles de la littérature [175, 176].

Moins d'attention sera portée aux propriétés optiques de la zircone, en comparaison avec celles du dioxyde d'uranium ou de l'EDM3, car la zircone ne sera pas directement exposée au faisceau laser, et dans les cas où nous cherchons à déterminer sa température expérimentalement (via une mesure par pyrométrie infra-rouge, mesure dépendante de l'émissivité), la précision recherchée est plus faible.

A.1. Température de transition de la Zircone non stabilisée

La température de transition de la Zircone non stabilisée est [172] :

$$T_{\text{trs}} = 1478 \pm 5 \text{ K} \quad (\text{A.1})$$

La température de transition est la température à laquelle, la structure cristalline du matériau va être modifiée (voir figure A.1). Il n'est pas conseillé d'utiliser un matériau au delà de sa température de transition, en effet, un changement au niveau de la structure cristalline, se produit souvent au détriment de l'intégrité physique du matériau.

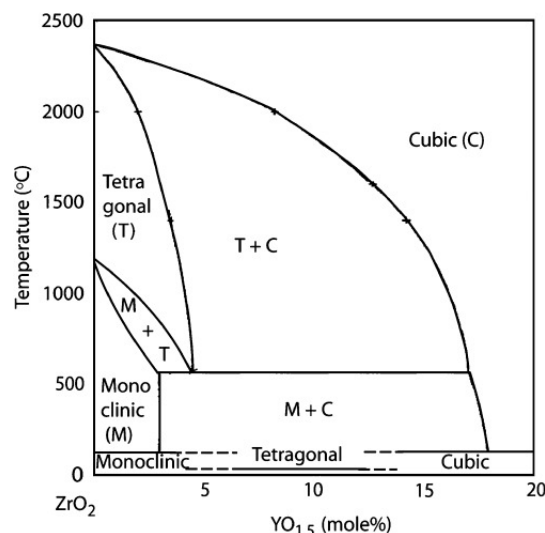


FIGURE A.1. – Diagramme de phase de la ZrO_2 stabilisée à l' Y_2O_3 [177]

Sous air, la température maximale d'utilisation pour la $\text{ZrO}_2/\text{Y}_2\text{O}_3$ est d'environ

1930°C d'après les données du fabricant. Cela ne correspond pas exactement aux conditions expérimentales pendant cette thèse (principalement, sous vide primaire : $2 \cdot 10^{-2}$ mbar). Néanmoins la gamme de températures supportées par la Zircone stabilisée à l'oxyde d'Yttrium correspond à l'ordre de grandeur de la température maximale de l' UO_2 au pic de la chauffe.

A.2. Température de fusion

Pour information, la température de fusion est [172] :

$$T_f = 2950K \pm 10 K \quad (A.2)$$

Ainsi, dans l'hypothèse, où les températures atteintes dépasseraient les températures recherchées, une température de fusion aussi élevée pour les deux matériaux (UO_2 et ZrO_2/Y_2O_3) offre un facteur de sécurité permettant par exemple d'éviter un mélange non-volontaire à l'état liquide de l'échantillon et du porte-échantillon.

A.3. Masse molaire

La masse molaire est [173] :

$$M = 123,223 \pm 0,001 \text{ g/mol} \quad (A.3)$$

A.4. Masse volumique

La masse volumique est [178] :

$$\rho(T) = 6041 - 0,076 \cdot T - 1,248 \cdot 10^{-4} \cdot T^2 + 6,450 \cdot 10^{-8} \cdot T^3 - 1,235 \cdot 10^{-11} \cdot T^4 \quad (A.4)$$

Avec ρ la masse volumique en $kg \cdot m^{-3}$ et T la température en K.

A.5. Capacité thermique

De 298 à 1478K [172] :

$$C_p^o = 16,64 + 1,80 \cdot 10^{-3} \cdot T - 3,36 \cdot 10^{-5} \cdot T^2 \quad (A.5)$$

Avec C_p , la capacité thermique en $J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$ et T, la température en K.

A.6. Conductivité thermique

La conductivité thermique n'étant jamais décrite directement et en détail dans la littérature à laquelle nous avons accédé. Nous utiliserons la relation entre

diffusivité, conductivité, capacité et masse volumique :

$$\kappa(T) = D \cdot \rho(T) \cdot C_p(T) \quad (\text{A.6})$$

Avec κ la conductivité thermique en $W.m^{-1}.K^{-1}$, ρ , la masse volumique en $kg.m^{-3}$, C_p , la capacité thermique en $J.mol^{-1}.K^{-1}$, T la température en K et D, la diffusivité thermique en $m^2.s^{-1}$ décrite par cette relation :

$$D = 5,5 \cdot 10^{-5} \pm 1,5 \quad (\text{A.7})$$

Ces valeurs sont issues du Thermophysical properties of matter - Volume 10 - Thermal Diffusivity [174]. Avec une conductivité thermique ne dépassant pas, d'après les calculs les $3 W.m^{-1}.K^{-1}$, la zircone peut être considérée comme un isolant efficace. A titre de comparaison, les métaux, réputés pour être très conducteurs thermiquement ont une conductivité entre 50 et $200 W.m^{-1}.K^{-1}$, le Zircaloy (un alliage métallique qui est utilisé pour la gaine et qui est décrit par la suite) a une conductivité comprise entre 250 et $350 W.m^{-1}.K^{-1}$, tandis que le Calcarb® (un isolant industriel en fibre de carbone) a une conductivité de $0.12 W.m^{-1}.K^{-1}$ (dans le vide à 400°C [179]). La Zircone peut ainsi protéger les pièces plus sensibles du porte-échantillon contre les pics de températures, tout en évacuant une partie de l'énergie thermique de l'échantillon d' UO_2 . Ce dernier point va nous permettre d'atteindre les conditions initiales de température sur l' UO_2 pendant les phases de préchauffe, l'énergie pouvant se dissiper lentement dans le porte-échantillon jusqu'à un état d'équilibre.

A.7. Emissivité

L'émissivité de l'YSZ, varie grandement en fonction de la longueur d'onde [175] (voir Fig A.2), de 1 à $2 \mu m$ (le domaine de fonctionnement des pyromètres) :

$$\varepsilon = 0.1 \pm 0.05 \quad (\text{A.8})$$

Sur la gamme de 5 à $13 \mu m$, ce qui correspond aux caméras thermiques que nous utiliserons, l'émissivité varie énormément (entre 0,1 et 1) avec en moyenne une valeur de 0.85.

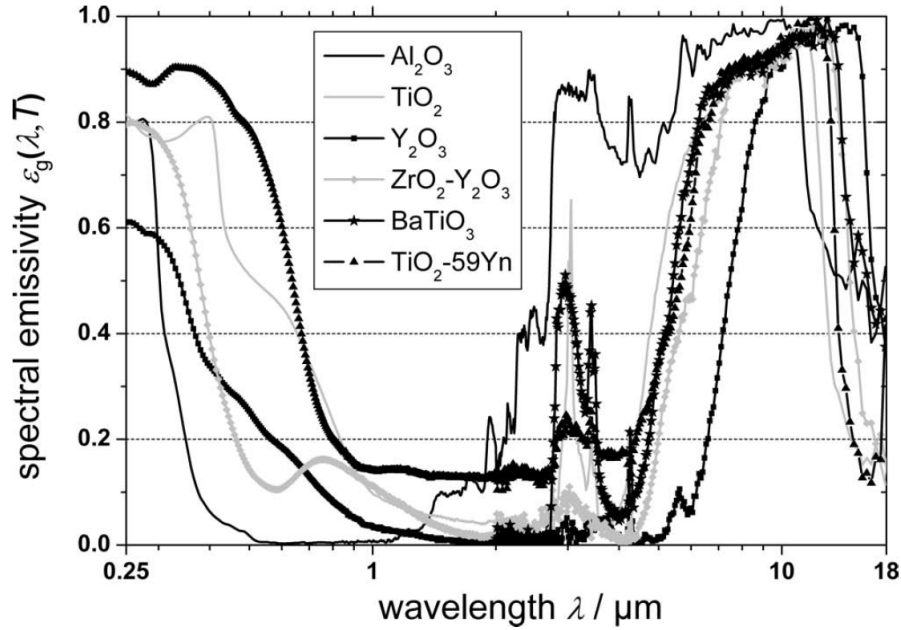


FIGURE A.2. – Emissivité spectrale de différentes céramiques à température ambiante [175]

A.8. Coefficient de réflexion

Le coefficient de réflexion à 1080nm est d'environ [176] :

$$R \simeq 13\% \quad (\text{A.9})$$

Le coefficient de réflexion est le pourcentage de la puissance laser réfléchi par le matériau. Ainsi, environ 13% de la puissance du laser ne contribue pas au chauffage du matériau.

A.9. Indice Optique

La partie réelle de l'indice optique à 1080nm est donnée par Wood et al. [176]

$$n = 2,1219 \quad (\text{A.10})$$

Dans l'article de Boulouz [180], on peut observer l'évolution de l'indice imaginaire (coefficient d'extinction) de 350 à 800 nm. Ce dernier décroît et se stabilise autour de :

$$k = 3 \cdot 10^{-3} \pm 1 \cdot 10^{-3} \quad (\text{A.11})$$

Une valeur très faible qui, couplée à un faible coefficient de réflexion, indique une transparence du matériau à la longueur d'onde du Laser. La Zircone est un matériau d'usage courant en optique [181], notamment pour les couches minces optiques

avec de nombreux avantages, principalement la qualité de ses propriétés optiques avec une transparence de l'ultra-violet au proche infra-rouge. Notons d'ailleurs que lors de travaux réalisés en amont à l'institut Fresnel de chauffe par laser de l'YSZ, il a été nécessaire de recouvrir l'échantillon d'une peinture thermique absorbante à la longueur d'onde du laser [182].

A.10. Coefficient de dilatation thermique

De 293 à 1673 K [178] :

$$\alpha = 4,514323 \cdot 10^{-6} + 1,113434 \cdot 10^{-8} \cdot T - 1,031377 \cdot 10^{-11} \cdot T^2 + 4,836019 \cdot 10^{-15} \cdot T^3 - 9,025746 \cdot 10^{-19} \cdot T^4 \quad (\text{A.12})$$

Avec α , le coefficient de dilatation thermique en K^{-1}

A.11. Module de Young

De 293K à 673K [178] :

$$Y(T) = 9,030858 \cdot 10^{10} + 1,160286 \cdot 10^9 \cdot T - 3711741,0 \cdot T^2 + 4622,07 \cdot T^3 - 2,030782 \cdot T^4 \quad (\text{A.13})$$

Avec Y, le module de Young en Pa, et T, la température en K.

De 673 à 1573 K [178] :

$$Y(T) = 2,55863 \cdot 10^{11} - 2,058251 \cdot 10^8 \cdot T + 181732,6 \cdot T^2 - 56,83814 \cdot T^3 \quad (\text{A.14})$$

Avec Y, le module de Young en Pa, et T, la température en K.

A.12. Coefficient de Poisson

De 293 à 693 [178] :

$$\nu(T) = 0,2320409 + 8,520111 \cdot 10^4 \cdot T - 2,828018 \cdot 10^{-6} \cdot T^2 + 4,013432 \cdot 10^{-9} \cdot T^3 - 1,985631 \cdot 10^{-12} \cdot T^4 \quad (\text{A.15})$$

Avec ν , le coefficient de Poisson, et T, la température en K.

De 693 à 1573 [178] :

$$\nu(T) = 0,1328066 + 6,31709 \cdot 10^{-4} \cdot T - 5,986993 \cdot 10^{-7} \cdot T^2 + 1,773211 \cdot 10^{-10} \cdot T^3 \quad (\text{A.16})$$

Avec ν , le coefficient de Poisson, et T, la température en K.

B. Zircaloy

Le zircaloy a déjà été présenté dans cette thèse (Section [B.1.b](#)), comme étant l'alliage à base de zirconium composant la gaine, contenant les pastilles de combustible. De plus, dans la description du RIA, il a été expliqué que la déformation de la pastille due à la rampe thermique pouvait engendrer la rupture de la gaine. Il est donc important dans le cadre de cette thèse, de prendre en compte l'impact de la gaine sur le processus de chauffe et d'étudier la mécanique et les contraintes entre gaine et pastille.

Dans cette section les propriétés thermiques seront majoritairement issues d'un document référence au CEA [[122](#)]. Les données manquantes vont être complétées par la base de données MPDB en utilisant le matériau "Zircaloy-4 (UNS R60804)". Le choix d'étudier le Zircaloy 4 n'est pas anodin, cela correspond à l'alliage utilisé en France dans les Réacteur à Eau Pressurisée (REP) depuis 1970. Le Zircaloy-4 se compose de (en % massique) :

- 98,23 de Zircone
- 1,3 d'étain.
- 0,22 de Fer,
- 0,13 d'Oxygène,
- 0,12 de Chrome,

Un nouvel alliage mentionné dans la section [B.1.b](#) est le M5, développé par AREVA. Cet alliage de zirconium et de niobium est conçu pour une meilleure résistance vis-à-vis de la corrosion.

B.1. Température d'utilisation du Zircaloy

Les critères de sécurité liés à l'Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) fixent une température de la gaine inférieure à 1204°C [[183](#)]. Cela correspond au changement de phase du zirconium non stabilisé. Le matériau s'oxyde à cette température et passe d'une phase α à une phase β , ce changement de phase a un impact majeur sur la majorité des propriétés du matériau.

B.2. Température de fusion

La température de fusion du zircaloy-4 n'étant pas donnée explicitement, de par sa composition, elle doit être plus faible que celle du zirconium (3120 K [[173](#)]). Ce qui serait assez similaire à la température de fusion du zircaloy-2 [[122](#)] :

$$T_f = 2098 \text{ K} \tag{A.17}$$

Fig. 1 Zr-Sn Phase Diagram

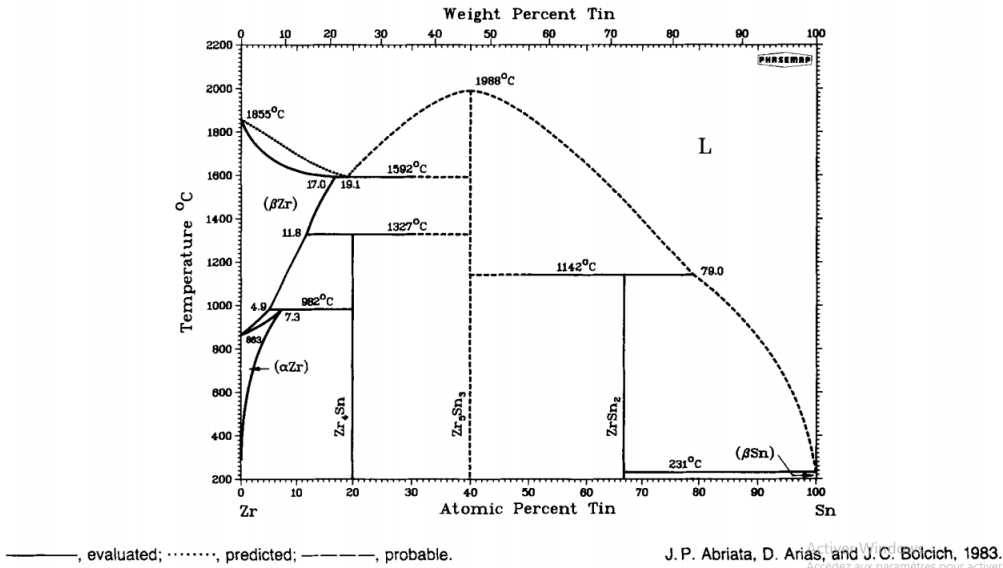


FIGURE A.3. – Diagramme de phase de la zirconie et de l'étain (les deux principaux composants du Zircaloy) [184]

B.3. Masse molaire

N'ayant pas trouvé la masse molaire du zircaloy, nous avons utilisé la composition de l'alliage et la masse molaire de chaque élément pour la définir. Nous avons utilisé pour la masse molaire de chaque élément les valeurs rapportées par la CIAAW [115]. La valeur obtenue est proche de la masse molaire du zirconium (qui compose l'alliage à 98.23 %) :

$$M = 91,3586 \pm 0,0001 \text{ g/mol} \quad (\text{A.18})$$

B.4. Masse volumique

De 293 à 1083 K [113] :

$$\rho(T) = 6595,2 - 0,1477 T \quad (\text{A.19})$$

Avec ρ en kg.m^{-3} et T en K.

De 1144 à 1800 K [113] :

$$\rho(T) = 6690.0 - 0.1855 T \quad (\text{A.20})$$

Avec ρ en kg.m^{-3} et T en K.

B.5. Capacité thermique

Aucune mesure de la capacité thermique du Zircaloy-4 n'a été trouvée dans la littérature. Il est conseillé par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (IAEA) d'utiliser les équations de la capacité thermique du Zircaloy-2 avec une incertitude plus importante [113]. De 273 à 1100 K (ce qui correspond à la phase α) :

$$C_P(T) = 255,66 + 0,1024 T \pm 20\% \quad (\text{A.21})$$

Avec C_p en $J.kg^{-1}.K^{-1}$ et T en K

De 1320 à 2000K (ce qui correspond à la phase β) :

$$C_P(T) = 597,1 - 0,4088 T + 1,565 \cdot 10^4 \cdot T^2 \pm 30\% \quad (\text{A.22})$$

Avec C_p en $J.kg^{-1}.K^{-1}$ et T en K

La capacité thermique pour la zone de transition α - β est défini par une fonction gaussienne :

$$f(T) = 1058,4 \exp \left[\frac{(T - 1213,8)^2}{719,61} \right] \pm 30\% \quad (\text{A.23})$$

Ainsi la capacité thermique du Zircaloy-4 entre 1100 et 1214 K est la somme des équations A.21+A.23. Et la somme des équations A.22+A.23, est la capacité thermique de la zircaloy-4 de 1214 à 1320K.

B.6. Conductivité thermique

De 300 à 1800K [113] :

$$\kappa(T) = 12,767 - 5,4348 \cdot 10^{-4} \cdot T + 8,9818 \cdot 10^{-6} \cdot T^2 \quad (\text{A.24})$$

avec T, la température en K et κ la conductivité thermique en $W.m^{-1}.K^{-1}$.

B.7. Dilatation thermique

Le Zircaloy est un matériau anisotrope (c'est-à-dire que certaines de ses propriétés dépendent de la direction). Ainsi la dilatation thermique de la gaine est différente entre l'axe radial (la partie circulaire de la gaine) et l'axe longitudinal (la partie droite de la gaine). En phase α ($300 < T < 1073 K$) [122] :

$$\frac{\Delta L}{L_0} = 4,44 \cdot 10^{-6} \cdot T - 1,24 \cdot 10^{-3} \quad (\text{A.25})$$

et

$$\frac{\Delta D}{D_0} = 6,72 \cdot 10^{-6} \cdot T - 2,07 \cdot 10^{-3} \quad (\text{A.26})$$

avec L_0 et D_0 en m et respectivement la longueur et le diamètre de la gaine à la température de référence, T la température en K, δL et δD , sans unité et respectivement la différence de longueur et de diamètre entre la température T et la température de référence.

En phase β ($1273 < T < fusionK$) :

$$\frac{\Delta L}{L_0} = 9,7 \cdot 10^{-6} \cdot T - 1,10 \cdot 10^{-2} \quad (\text{A.27})$$

et

$$\frac{\Delta D}{D_0} = 9,7 \cdot 10^{-6} \cdot T - 9,45 \cdot 10^{-3} \quad (\text{A.28})$$

avec les termes présentés précédemment.

B.8. Module de Young et Coefficient de Poisson

L'étude de la littérature ne nous a pas permis de trouver d'expression du module de Young et du coefficient de Poisson, pour le Zircaloy-4. Dans la base de donnée MPDB [178], pour le Zircaloy-2 (UNS R60802), de 293 à 773 K :

$$Y(T) = 1,19067 \cdot 10^7 \cdot T \quad (\text{A.29})$$

et

$$\nu(T) = 0,3769937 - 2,192943 \cdot 10^{-1} \cdot T - 4,830253 \cdot 10^{-8} \cdot T^2 \quad (\text{A.30})$$

Avec Y , le module de Young en Pa, ν le coefficient de Poisson (sans unité), et T la température en K.

C. Saphir

Le saphir est constitué d'alumine α (nom commun de l'oxyde d'aluminium α ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$)). Le saphir va être utilisé dans le porte-échantillon pour maintenir l'échantillon d' UO_2 , et empêcher une dispersion dans toute la chambre expérimentale en cas de fissurations et fracturations tout en permettant le passage du faisceau laser. Ainsi, les propriétés du saphir les plus importantes dans la configuration sont sa température maximale d'utilisation, sa transmission à la longueur d'onde du Laser et ses propriétés thermiques. La première permet d'expliquer le choix du saphir par rapport à un autre matériau pour être utilisé en tant qu'optique au contact du l'échantillon, tandis que les autres propriétés seront nécessaires pour quantifier l'impact des hublots de saphir sur la dynamique de chauffe par Laser de l' UO_2 . Le saphir avec la spinelle (MgAl_2O_4) et l'oxynitride d'aluminium sont les matériaux les plus durables disponibles dans le commerce et utilisables pour une application entre $0.3 \mu\text{m}$ et $5 \mu\text{m}$ dans des environnements nécessitant une résistance à la corrosion, l'érosion ou à de hautes températures [185].

C.1. Température de fusion

La température de fusion du saphir est de [186] :

$$T_f = 2040 \pm 20^\circ C \quad (\text{A.31})$$

Le saphir est utilisable jusqu'à $1900^\circ C$ d'après les informations du fabricant.

C.2. Masse volumique

De 200 à 2000 K [178] :

$$\begin{aligned} \rho(T) = 3997,456 + 0,01172268 \cdot T - 3,077699 \cdot 10^{-4} \cdot T^2 + 4,224714 \cdot 10^{-6} \cdot T^3 \\ - 2,907618 \cdot 10^{-8} \cdot T^4 + 6,331301 \cdot 10^{-11} \cdot T^5 \end{aligned} \quad (\text{A.32})$$

avec T, la température en K et ρ , la masse volumique en $kg.m^{-3}$.

C.3. Capacité thermique

De 300 à 810 K [178] :

$$C_p(T) = -527,947 + 7,53157 \cdot T - 0,013918 \cdot T^2 + 1,2422 \cdot 10^{-5} \cdot T^3 - 4,32721 \cdot 10^{-9} \cdot T^4 \quad (\text{A.33})$$

avec T, la température en K et C_p la capacité thermique en $J.m^{-1}.K^{-1}$. et de 810 à 2250 K [178] :

$$C_p(T) = 745,64 + 0,95635 \cdot T^1 - 7,1151 \cdot 10^{-4} \cdot T^2 + 2,6876 \cdot 10^{-7} \cdot T^3 - 3,8505 \cdot 10^{-11} \cdot T^4 \quad (\text{A.34})$$

avec T, la température en K et C_p la capacité thermique en $J.m^{-1}.K^{-1}$.

C.4. Conductivité thermique

De 300 à 2073K [178] :

$$\kappa(T) = 75,7723 - 0,189857 \cdot T + 2,0231 \cdot 10^{-4} \cdot T^2 - 9,79306 \cdot 10^{-8} \cdot T^3 + 1,77936 \cdot 10^{-11} \cdot T^4 \quad (\text{A.35})$$

avec T, la température en K et κ la conductivité thermique en $W.m^{-1}.K^{-1}$.

C.5. Transmission

D'après données fournies par le fabricant (Fig A.4), à 1080nm la transmission du saphir est de :

$$T = 85 \pm 1\% \quad (\text{A.36})$$

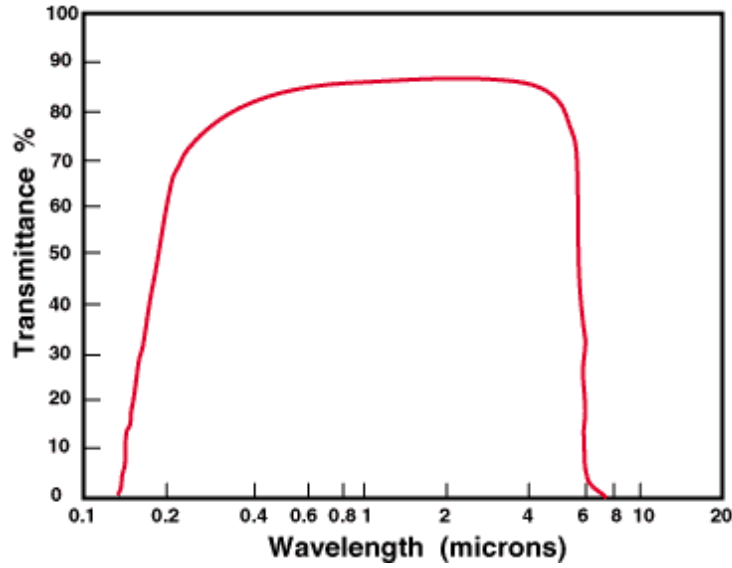


FIGURE A.4. – Graphique de la transmission du saphir [187]

La transmission est relativement constante à 85 % sur la gamme de 1 à 2 microns (le domaine d'utilisation des pyromètres). En revanche, la transmission est nulle au-delà de 6 microns, une gamme souvent utilisée pour les caméras infra-rouge, aussi appelées caméras thermiques. LWIR cameras ou Long Wavelength Infrared cameras, sont des caméras donc les capteurs utilisent la gamme spectrale comprise entre 7 et 12 microns. Sur cette gamme, l'absorption atmosphérique est minimale.

C.6. Dilatation thermique

De 200 à 2000 K [178] :

$$\alpha = 1,535658 \cdot 10^{-6} + 1,93357 \cdot 10^{-8} \cdot T - 2,668347 \cdot 10^{-11} \cdot T^2 + 2,023163 \cdot 10^{-14} \cdot T^3 - 7,696371 \cdot 10^{-18} \cdot T^4 + 1,158919 \cdot 10^{-21} \cdot T^5 \quad (\text{A.37})$$

Avec α , le coefficient de dilatation thermique en K^{-1} , et T la température en K.

C.7. Module de Young et Coefficient de Poisson

De 293 à 1400 K :

$$Y(T) = 4,064731 \cdot 10^{11} \cdot T - 3,283416 \cdot 10^3 \cdot T^2 \quad (\text{A.38})$$

et

$$\nu(T) = 0,228619 + 1,822505 \cdot 10^{-5} \cdot T - 2,475367 \cdot 10^{-9} \cdot T^2 \quad (\text{A.39})$$

Avec Y , le module de Young en Pa, ν le coefficient de Poisson (sans unité), et T la température en K.

B. Equation du Faisceau Gaussien Annulaire

$$I(r) = I_{max} \cdot e^{-2\frac{(r-r_{an})^2}{\omega_{an}^2}} \quad (\text{B.1})$$

$$P(r, \theta) = \int_0^{2\pi+\infty} I(r), \theta, r, d\theta, dr \quad (\text{B.2})$$

$$P(r) = 2\pi \int_0^{+\infty} I_0 e^{-2\frac{(r-R)^2}{\omega_{an}^2}} \cdot r \cdot dr \quad (\text{B.3})$$

$$\text{Soit } A = r - r_{an} \text{ alors :} \quad (\text{B.4})$$

$$\frac{P(r)}{2\pi} = I_0 \int_{-r_{an}}^{+\infty} e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}} \cdot (A + r_{an}) \cdot dA \quad (\text{B.5})$$

$$\frac{P(r)}{2\pi \cdot I_0} = \int_{-r_{an}}^{+\infty} e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}} \cdot A \cdot dA + \int_{-r_{an}}^{+\infty} e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}} \cdot r_{an} \cdot dA \quad (\text{B.6})$$

$$\frac{P(r)}{2\pi \cdot I_0} = \int_{-r_{an}}^{+\infty} \left(-\frac{\omega_{an}^2}{4}\right) \cdot \left(-\frac{4}{\omega_{an}^2}\right) \cdot A \cdot e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}} dA + r_{an} \cdot \int_{-r_{an}}^{+\infty} e^{-2\frac{A^2}{\omega_{an}^2}} dA \quad (\text{B.7})$$

$$\text{Avec } u = -\frac{2A^2}{\omega_{an}^2} \text{ et } u' = -\frac{4A}{\omega_{an}^2} \text{ on a } \int u' \cdot e^u \cdot du = e^u \quad (\text{B.8})$$

$$\text{Soit } B = \frac{\sqrt{2}A}{\omega_{an}} \quad (\text{B.9})$$

$$\frac{P(r)}{2\pi \cdot I_0} = -\frac{\omega_{an}^2}{4} \left[e^{\frac{-2A^2}{\omega_{an}^2}} \right]_{-r_{an}}^{+\infty} + r_{an} \cdot \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{\omega_{an}}{\sqrt{2}} \int_{-\frac{\sqrt{2}r_{an}}{\omega_{an}}}^{+\infty} e^{-B^2} dA \quad (\text{B.10})$$

$$\text{Avec } t = B \text{ et } x = -\frac{\sqrt{2} \cdot r_{an}}{\omega_{an}} \text{ on a } \operatorname{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^{+\infty} e^{-t^2} \cdot dt \quad (\text{B.11})$$

$$\frac{P(r)}{2\pi \cdot I_0} = -\frac{\omega_{an}^2}{4} \cdot \left(0 - e^{\frac{-2r_{an}^2}{\omega_{an}^2}}\right) + r_{an} \cdot \frac{\omega_{an} \cdot \sqrt{\pi}}{2 \cdot \sqrt{2}} \cdot \operatorname{erfc}\left(-\frac{\sqrt{2} \cdot r_{an}}{\omega_{an}}\right) \quad (\text{B.12})$$

$$\frac{P(r)}{2\pi \cdot I_0} = \frac{\omega_{an}^2}{4} \cdot e^{\frac{-2r_{an}^2}{\omega_{an}^2}} + r_{an} \cdot \frac{\omega_{an} \cdot \sqrt{\pi}}{2 \cdot \sqrt{2}} \cdot \operatorname{erfc}\left(-\frac{\sqrt{2} \cdot r_{an}}{\omega_{an}}\right) \quad (\text{B.13})$$

$$I_{max} = \frac{P}{2\pi \cdot \left(\frac{\omega_{an}^2}{4} \cdot e^{\frac{-2r_{an}^2}{\omega_{an}^2}} + r_{an} \cdot \frac{\omega_{an} \cdot \sqrt{\pi}}{2 \cdot \sqrt{2}} \cdot \operatorname{erfc} \left(-\frac{\sqrt{2} \cdot r_{an}}{\omega_{an}} \right) \right)} \quad (\text{B.14})$$

$$I_{max} = \frac{P}{\pi \cdot \left(\frac{\omega_{an}^2}{2} \cdot e^{\frac{-2r_{an}^2}{\omega_{an}^2}} + r_{an} \cdot \frac{\omega_{an} \cdot \sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \cdot \operatorname{erfc} \left(-\frac{\sqrt{2} \cdot r_{an}}{\omega_{an}} \right) \right)} \quad (\text{B.15})$$

$$I(r) = \frac{P}{\pi \cdot \left(\frac{\omega_{an}^2}{2} \cdot e^{\frac{-2r_{an}^2}{\omega_{an}^2}} + r_{an} \cdot \frac{\omega_{an} \cdot \sqrt{\pi}}{\sqrt{2}} \cdot \operatorname{erfc} \left(-\frac{\sqrt{2} \cdot r_{an}}{\omega_{an}} \right) \right)} \cdot e^{-2 \frac{(r-r_{an})^2}{\omega_{an}^2}} \quad (\text{B.16})$$

C. Tableau des échantillons d'EDM

Echantillon parallélépipède	Dimensions : Longueur x hauteur x épaisseur (mm)	Remarques
IF-1 EDM3-1	80x30x15	Chauffage haute température
Echantillon cylindrique	Dimensions : Diamètre x épaisseur (mm)	Remarques
Cal EDM3-1	30x5	Expériences de calibration
Cal EDM3-2	30x3	Expériences de calibration
IF-2 EDM3-1	30x3	Expériences 1500°C Faisceau collimaté
IF-2 EDM3-2	30x3	Expériences 2000°C Faisceau collimaté
IF-2 EDM3-3	30x3	Expériences 2500°C Faisceau focalisé
IF-2 EDM3-4	30x3	Expériences 3000°C Faisceau focalisé
Cal EDM3-TC	34x10	Echantillon instrumenté avec 2 thermocouples de type C Expériences de calibration
IF-RIA EDM3-1	8x2	Porte-échantillon adapté
IF-RIA EDM3-2	8x0.5	Porte-échantillon adapté
IF-RIA EDM3-3	8x1	Porte-échantillon adapté

TABLE I. – Tableau des échantillons d'EDM utilisés lors des expériences

D. Post traitement de l'émissivité (Matlab)

La mission de ce programme est de recalculer la température mesurée par un appareil, ici la caméra thermique, en fonction de la valeur de l'émissivité au moment de la mesure de la température et de la nouvelle valeur de l'émissivité (suite par exemple à une meilleure évaluation de celle-ci par une nouvelle campagne de calibrage).

```
1 Clear all
2 Close all
3 OldT = 800;      %  Temperature avec l ancienne emissivite
4 OldE = 0.78;    %  Valeur de l ancienne emissivite
5 NewT = 200; %  Valeur initiale de la temperature qui va etre ...
    incremente par le logiciel
6 NewE= 0.75;    %  Valeur de la nouvelle emissivite, pour ...
    recalculer la temperature
7 h = 6.62606979*10^(-34); %  constante de Planck
8 c = 299792458; %  vitesse de la lumiere
9 k = 1.38064852*10^(-23); %  constante de Boltzmann
10 lambda1 = 7.5*10^(-6); %  Debut de la plage de mesure du ...
    capteur, ici pour la camera thermique FLIR
11 lambda2 = 14*10^(-6); %  Fin de la plage de mesure du capteur
12 IntFi1 = integral(funcntInt1( lambda1,OldE,h,k,c,OldT ...
    ),lambda1,lambda2);
13 IntFi2 = integral(funcntInt1( lambda1,NewE,h,k,c,NewT ...
    ),lambda1,lambda2);
14
15 while IntFi2 < IntFi1
16     NewT=NewT+1;
17     IntFi2 = integral(funcntInt1( lambda1,NewE,h,k,c,NewT ...
    ),lambda1,lambda2);
18 end
19 NewT
```

Pour cela, le programme va incrémenter la variable définissant la nouvelle température et répéter ce processus tant que les intégrales des fonctions de luminance énergétique spectrale (selon les bornes de la plage de longueur d'onde du capteur) ne sont pas égales et ce avec une émissivité différente. Avec `funcntInt1`, la fonction de luminance énergétique spectrale dépendante de la longueur d'onde et de la température telle que démontrée par Planck. `funcntInt1` est codée ainsi :

```
1 function [ Int1 ] = functInt1( lambda,OldE,h,k,c,OldT )
2 Int1 = @(lambda) ((OldE.*2.*h.*c.*c)./ ...
    (lambda.*lambda.*lambda.*lambda.*lambda)).* ...
    (1./(-1+exp((h.*c)./ (lambda.*k.*OldT))));
```

E. Macro Fiji

Des images .CSV de la caméra FLIR à un stack d'images en Tiff avec l'échelle, une barre de calibration ainsi que d'une extraction en point de données à chaque image de la température le long d'un axe .

```
Macro "CSVtoTiff+PlotProfile"{
dir = getDirectory("Choose directory");
list = getFileList(dir);
stack = "stacks";
run("Close All");
setBatchMode(true);
for (i=0; i<list.length; i++) {
file = dir + list[i];
run("Text Image... ", "open=& file");
//setTool("rectangle");
makeRectangle(263, 0, 145, 104);
run("Crop");
}

run("Images to Stack", "file2");
run("Rotate... ", "angle=5 grid=1 interpolation=Bilinear stack");
run("Scale...", "x=1.414 y=1.0 z=1.0 width=205 height=147 depth=31 interpolation=Bilinear average process create");
run("Set Scale...", "distance=45 known=8 unit=mm global");
run("Scale Bar...", "width=8 height=4 font=14 color=White background=None location=[Lower Left] bold overlay label");
run("mpl-inferno");
run("Calibration Bar...", "location=[Upper Right] fill=None label=White number=5 decimal=0 font=8 zoom=0.65 bold overlay");
saveAs("tif", dir);

run("Rotate 90 Degrees Right");
//setTool("rectangle");
makeRectangle(51, 90, 46, 2);

macro "Stack profile Data" {
run("Plot Profile");
Plot.getValues(x, y);
}
```



```

run("Clear Results");
for (i=0; i<x.length; i++)
setResult("x", i, x[i]);
close();
n = nSlices;
for (slice=1; slice<=n; slice++) {
showProgress(slice, n);
setSlice(slice);
profile = getProfile();
sliceLabel = toString(slice);
sliceData = split(getMetadata("Label"), "
n");
if (sliceData.length>0) {
line0 = sliceData[0];
if (lengthOf(sliceLabel) > 0)
sliceLabel = sliceLabel+ " (" + line0 + ")";
}
for (i=0; i<profile.length; i++)
setResult(sliceLabel, i, profile[i]);
}
updateResults;
saveAs("txt", dir);
}

```

F. Résultats des chauffes sur EDM dans la configuration finale

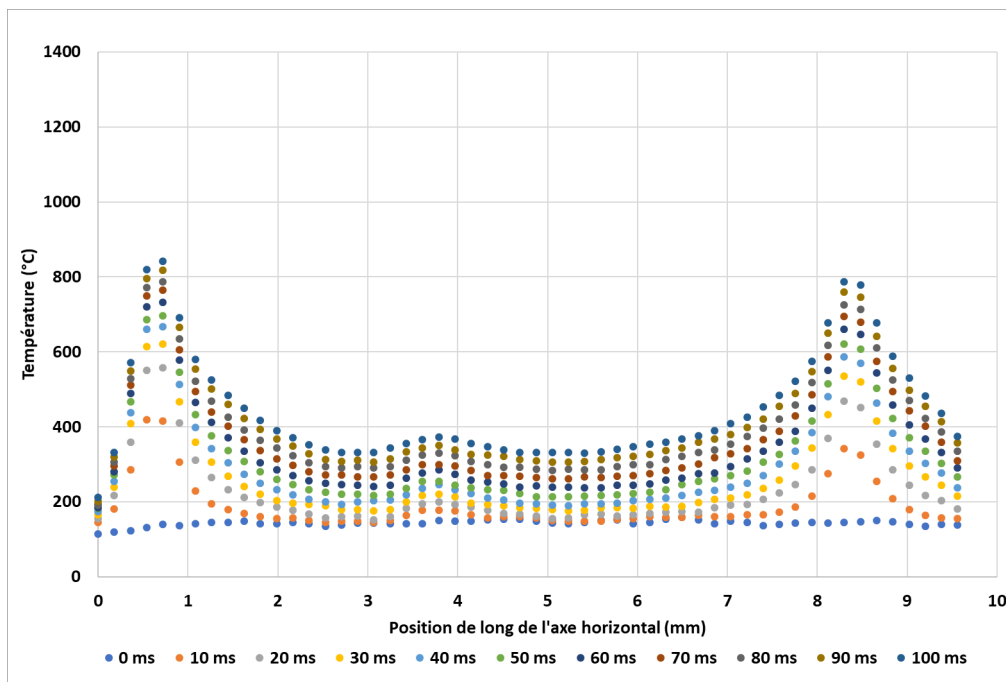


FIGURE F.1. – Graphique des profils thermiques à différents temps selon l'axe horizontal pour la chauffe S2-600W-100ms

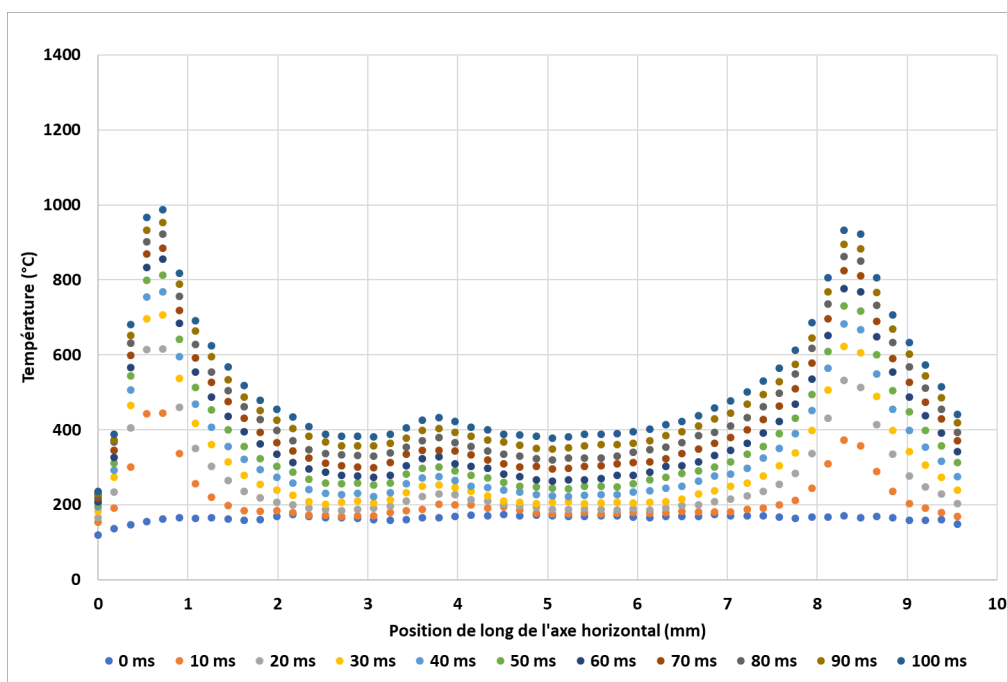


FIGURE F.2. – Graphique des profils thermiques à différents temps selon l'axe horizontal pour la chauffe S2-750W-100ms

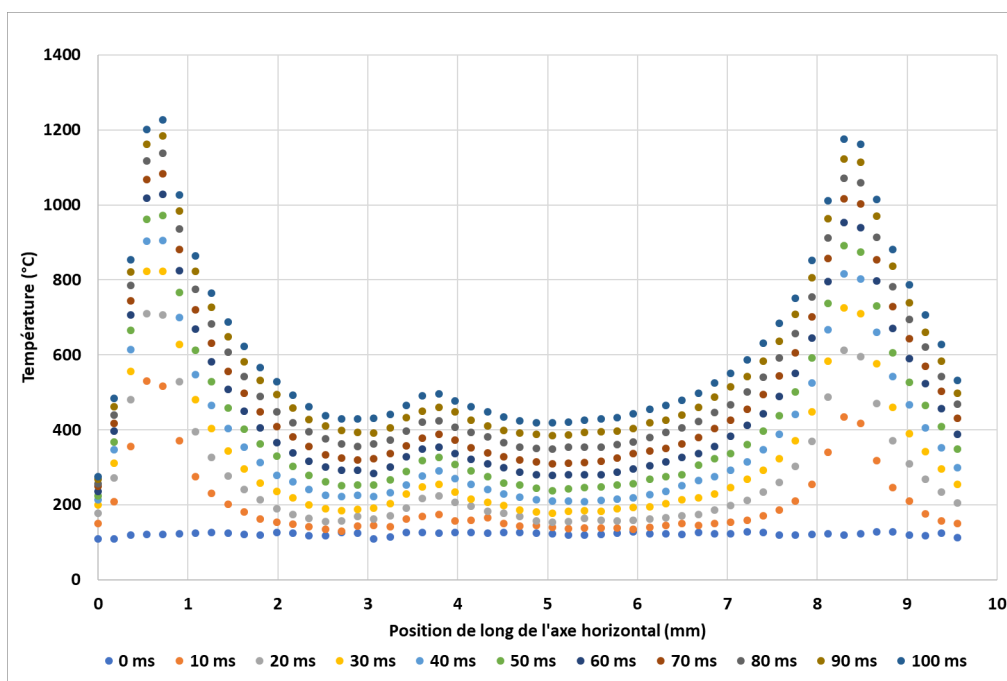


FIGURE F.3. – Graphique des profils thermiques à différents temps selon l'axe horizontal pour la chauffe S2-1050W-100ms

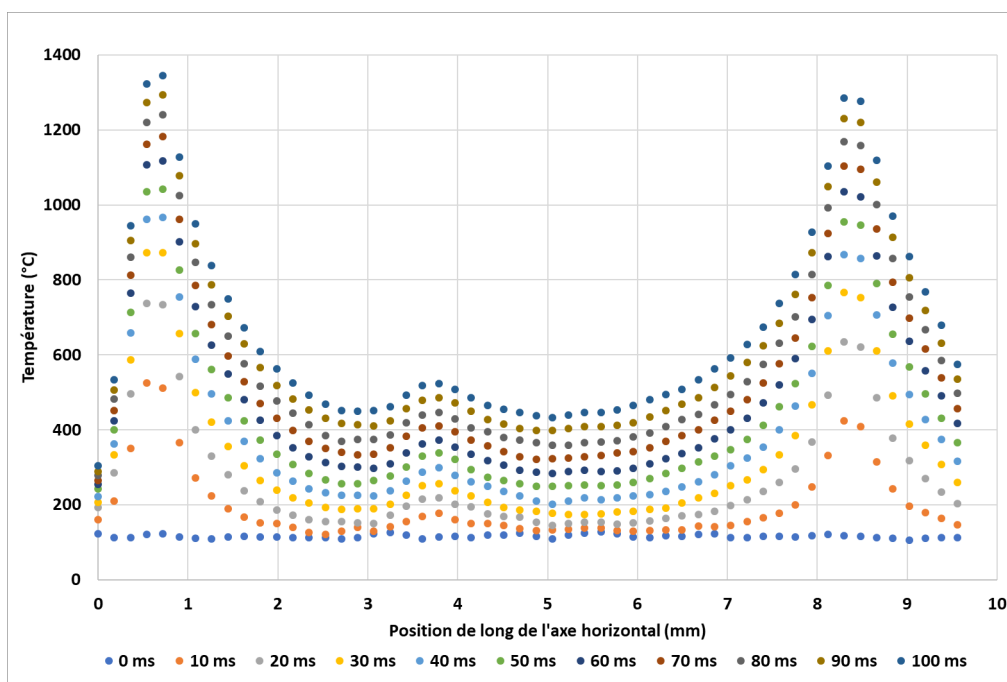


FIGURE F.4. – Graphique des profils thermiques à différents temps selon l'axe horizontal pour la chauffe S2-1200W-100ms

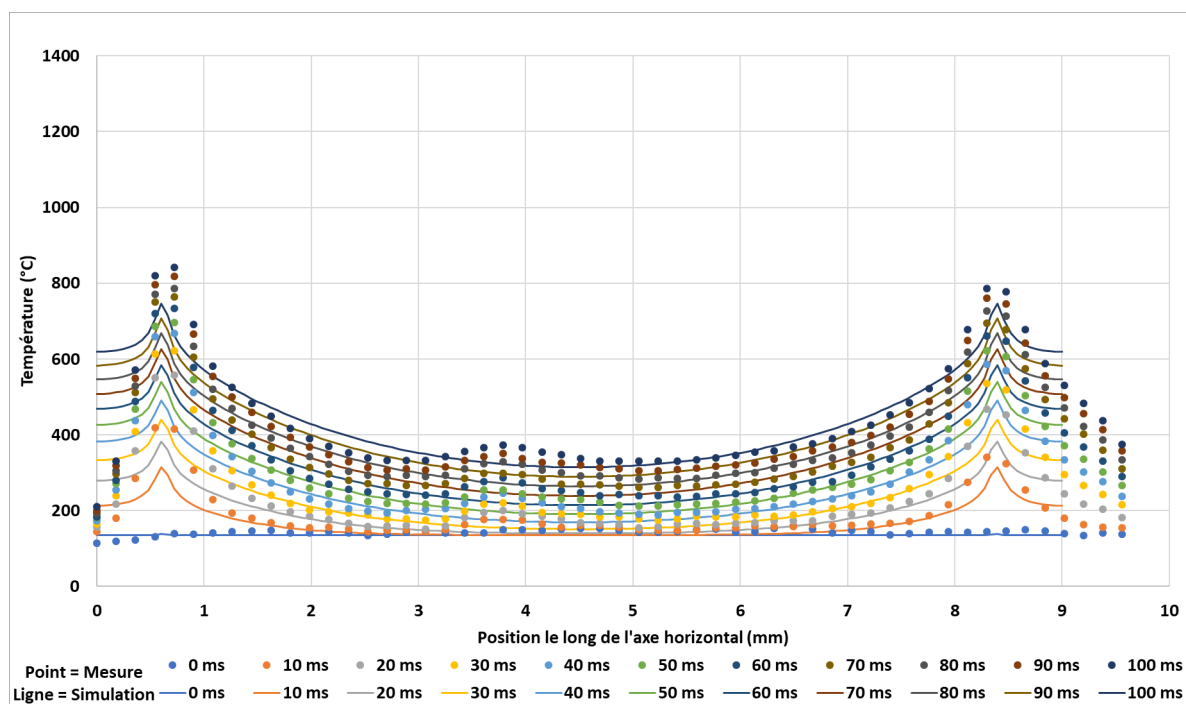


FIGURE F.5. – Graphique des profils thermiques (en °C) à différents temps selon l'axe horizontal pour la chauffe S2-600W-100ms confrontant les valeurs numériques (S dans la légende, avec rapport=0%, $T_{ini} = 300^{\circ}\text{C}$, $\omega_{an} = 0,1 \text{ mm}$, $r_{an} = 3,9 \text{ mm}$ et $P_{laser} = 600 \text{ W}$) et expérimentales

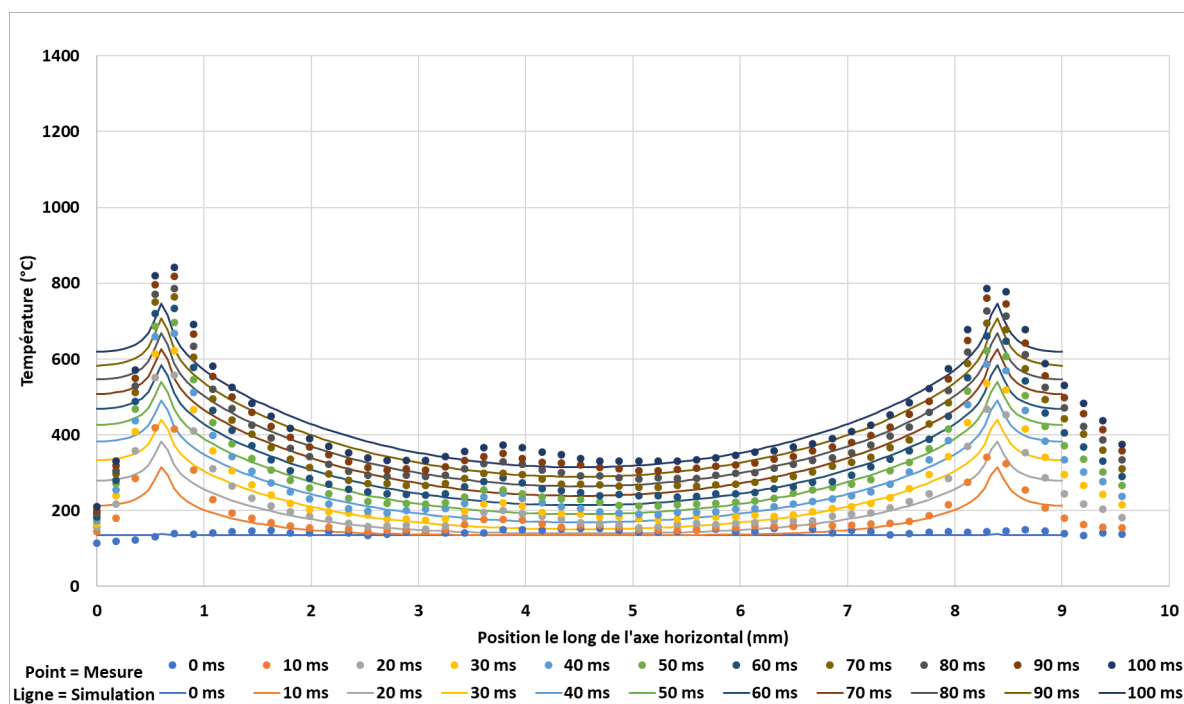


FIGURE F.6. – Graphique des profils thermiques (en °C) à différents temps selon l'axe horizontal pour la chauffe S2-750W-100ms confrontant les valeurs numériques (S dans la légende, avec rapport=0%, $T_{ini} = 300^{\circ}\text{C}$, $\omega_{an} = 0,1 \text{ mm}$, $r_{an} = 3,9 \text{ mm}$ et $P_{laser} = 750 \text{ W}$) et expérimentales

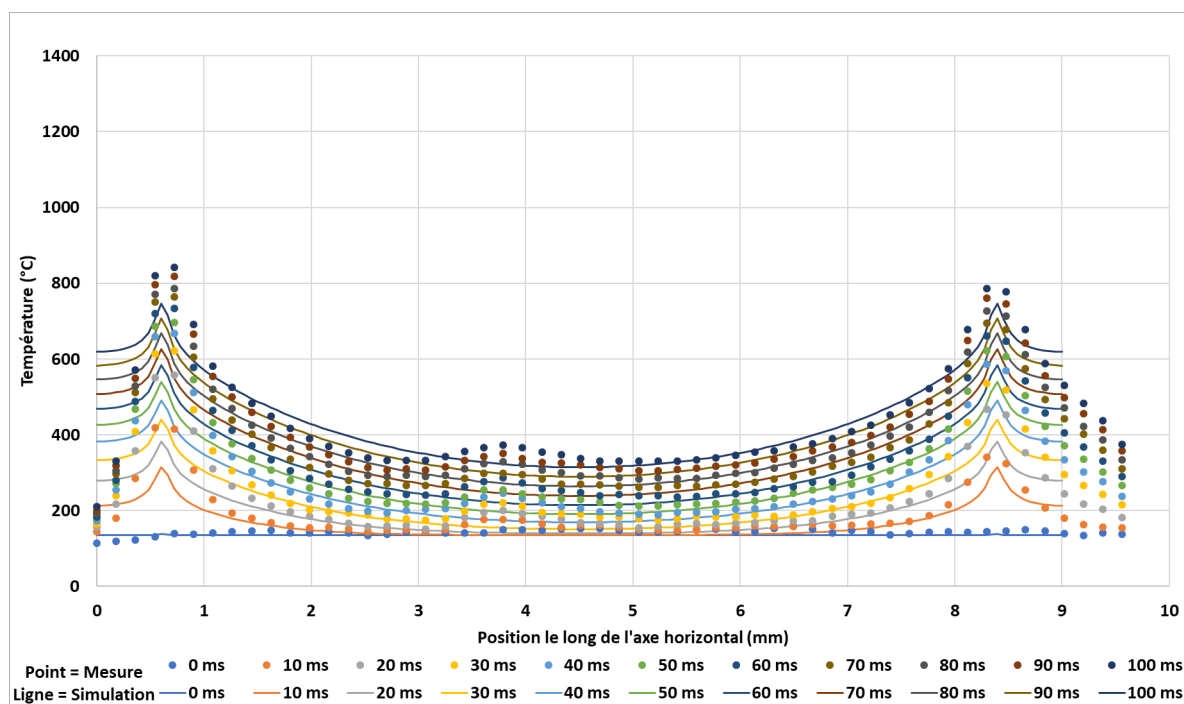


FIGURE F.7. – Graphique des profils thermiques (en °C) à différents temps selon l'axe horizontal pour la chauffe S2-1050W-100ms confrontant les valeurs numériques (S dans la légende, avec rapport=0%, $T_{ini} = 300^\circ\text{C}$, $\omega_{an} = 0,1 \text{ mm}$, $r_{an} = 3,9 \text{ mm}$ et $P_{laser} = 1050 \text{ W}$) et expérimentales

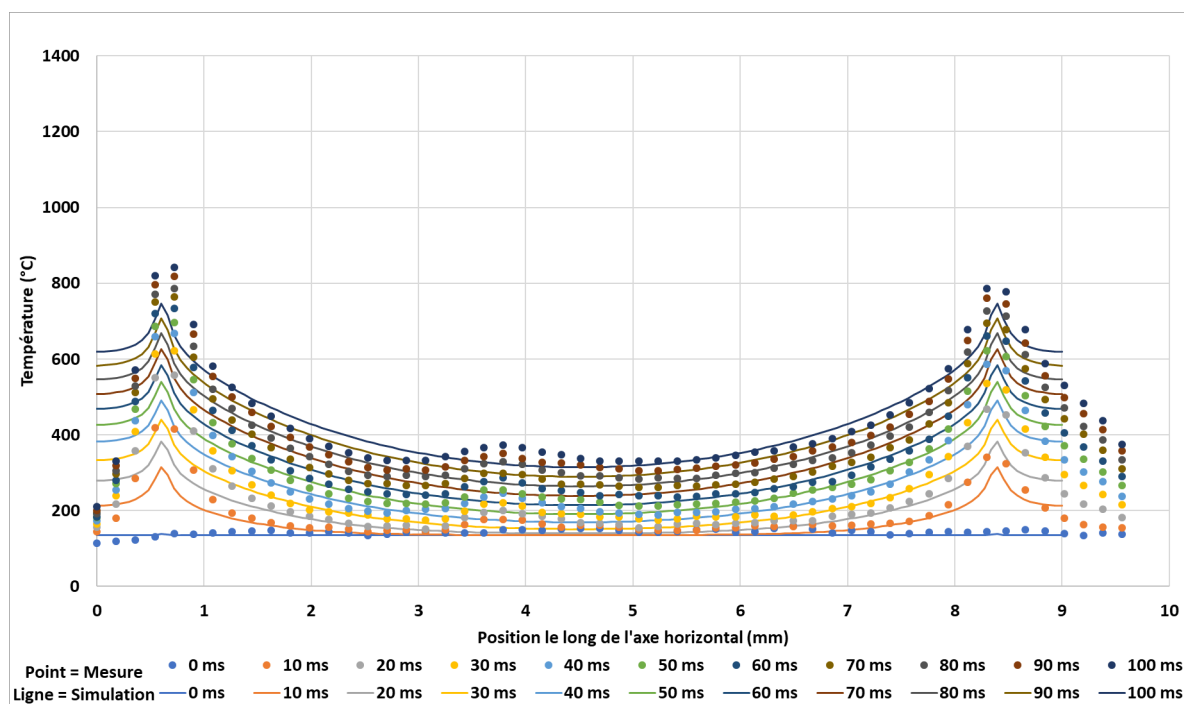


FIGURE F.8. – Graphique des profils thermiques (en °C) à différents temps selon l'axe horizontal pour la chauffe S2-1200W-100ms confrontant les valeurs numériques (S dans la légende, avec rapport=0%, $T_{ini} = 300^\circ\text{C}$, $\omega_{an} = 0,1 \text{ mm}$, $r_{an} = 3,9 \text{ mm}$ et $P_{laser} = 1200 \text{ W}$) et expérimentales

Bibliographie

- [1] ONU. *World Population Prospect*. URL : <https://population.un.org/wpp/Graphs/Probabilistic/POP/TOT/900>. (Accessed : 2019-11-13) (cf. p. 9).
- [2] Pierre Le HIR. *Climat : 2017, année de tous les records*. URL : https://www.lemonde.fr/climat/article/2018/08/01/climat-2017-annee-de-tous-les-records_5338388_1652612.html. (Accessed : 2019-11-13) (cf. p. 9).
- [3] IEA. *Global Energy CO2 Status Report 2019*. URL : <https://www.iea.org/reports/global-energy-co2-status-report-2019>. (Accessed : 2020-02-17) (cf. p. 9).
- [4] Forum NUCLÉAIRE. *L'énergie nucléaire en Inde*. URL : <https://www.forumnucleaire.be/theme/dans-le-monde/inde>. (Accessed : 2019-11-13) (cf. p. 9).
- [5] Forum NUCLÉAIRE. *L'énergie nucléaire en Chine*. URL : <https://www.forumnucleaire.be/theme/dans-le-monde/chine>. (Accessed : 2019-11-13) (cf. p. 9).
- [6] Forum NUCLÉAIRE. *L'énergie nucléaire en Finlande*. URL : <https://www.forumnucleaire.be/theme/dans-le-monde/finlande>. (Accessed : 2019-11-13) (cf. p. 9).
- [7] Société Française d'Énergie NUCLÉAIRE. *L'État tchèque soutient de nouvelles unités nucléaires*. URL : <http://www.sfen.org/rgn/etat-tcheque-soutient-nouvelles-unites-nucleaires-0>. (Accessed : 2019-11-13) (cf. p. 9).
- [8] Autorité de SÛRETÉ NUCLÉAIRE. *Les centrales électronucléaires*. URL : https://www.asn.fr/annual_report/2010fr/fichiers/Chap_12_2010.pdf. (Accessed : 2019-11-13) (cf. p. 9).
- [9] F. SCHMITZ et J. PAPIN. « High burnup effects on fuel behavior under accident conditions : the tests cabri rep-na ». In : *J. Nucl. Mater.* 270 (1999), p. 55. URL : [https://doi.org/10.1016/S0022-3115\(98\)00895-2](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(98)00895-2) (cf. p. 10).

- [10] I. GUENOT-DELAHAIE, J. SERCOMBE et AL. « Simulation of reactivity-initiated accident transients on uo2-m5 fuelrods with alcyone v1.4 fuel performance code ». In : *Nuclear Engineering and Technology* 50 (2018), p. 268. URL : <https://doi.org/10.1016/j.net.2017.12.006> (cf. p. 10).
- [11] J. PAPIN et ALL. « Summary and interpretation of the CABRI REP-Na program ». In : *Nuclear Technology* 157.3 (2007), p. 230–250 (cf. p. 10).
- [12] N. MAZZUCCHI. « Energie, Ressources, technologies et enjeux de pouvoir ». In : *1st ed. Paris : Armand Colin* (2017), p. 13 (cf. p. 13).
- [13] M. PAUL. « Le vivant et l'énergie : la grande histoire de l'énergie sur Terre ». In : *Les énergies. Comprendre les enjeux* (2011), p. 21–27 (cf. p. 13).
- [14] A. KARAM. « The natural nuclear reactor at Oklo ». In : *Radiation Information Network* (2005) (cf. p. 13).
- [15] CEA. *L'histoire de la création du CEA*. URL : <http://www.cea.fr/Pages/le-cea/histoirecreation-CEA.aspx>. (Accessed : 2019-09-01) (cf. p. 14).
- [16] RTE. *Bilan électrique 2018 : Production totale*. URL : <https://bilan-electrique-2018.rte-france.com/production-totale/#>. (Accessed : 2019-03-20) (cf. p. 14).
- [17] AITF. *Chiffres clés de l'énergie : Edition 2015*. URL : https://www.aitf.fr/system/files/files/nouveau_catalogue_2016__0.pdf. (Accessed : 2019-03-20) (cf. p. 14).
- [18] STING et ALL. *Carte des centrales françaises en activité, classées selon leur type*. URL : https://fr.wikipedia.org/wiki/Liste_des_reacteurs_nucleaires_en_France. (Accessed : 2019-04-01) (cf. p. 14).
- [19] H. BAILLY, D. MENESSIER et C. PRUNIER. « Le combustible des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides conception et comportement ». In : *Série Synthèses, Eyrolles* (1996) (cf. p. 15–19, 23, 24).
- [20] B. THIEBAUT et F.P. ROUX. « Automatisation de la fabrication du combustible pour l'optimisation de la productivité et de la fiabilité ». In : *Improvements in Water Reactor Fuel Technology and Utilization, Stockholm* (1986) (cf. p. 18).
- [21] D. BARON et P. BOUFFIOUX. « Le crayon combustible des réacteurs à eau pressurisée de grande puissance (Tranches 900 et 1300 Mwe) ». In : *Rapport EDF-HT.M2/88-27A* (1989) (cf. p. 18, 22).
- [22] J.D. BARBAT. « Le concepteur et le producteur d'alliages, la filière française du zirconium ». In : *Revue Générale Nucléaire Vol 3* (1992) (cf. p. 19).
- [23] G. MONEYRON. « Fabrication du combustible à base d'uranium ». In : *Techniques de l'ingénieur, Génie nucléaire, Volume B8 II* () (cf. p. 19).

- [24] H. BAILLY, J. ABGRALL et A. MILESI. « Fabrication du combustible à base de plutonium ». In : *Techniques de l'ingénieur, Génie nucléaire, Volume B8 II* () (cf. p. 19).
- [25] M. PIRSOUL. « Procédé de fabrication de pastilles de combustible nucléaire à base d'oxyde d'uranium ». In : *Brevet français N° 2599883 du 10 juin 1986* () (cf. p. 19).
- [26] T. PETIT. « Etude de la structure électronique des actinides et de leur dioxydes. Application aux défauts ponctuels et aux gaz de fission dans le dioxyde d'uranium ». In : *Thèse de doctorat* (1996) (cf. p. 19, 20).
- [27] J. NOIROT. « Le comportement des combustibles UO₂ et MOX en réacteur ». In : *À quoi ressemble le combustible des réacteurs à eau - CEA* (Accessed : 2020-07-02). URL : http://www.cea.fr/Documents/monographies/combustibles-nucl%5C%C3%5C%A9aires_r%5C%C3%5C%A9acteurs-eau.pdf (cf. p. 21, 26).
- [28] H.J. MATZKE. « Radiation damage in crystalline insulators, oxides and ceramic nuclear fuels ». In : *Radiation Effects, Vol 64* (1982), p. 3 (cf. p. 21).
- [29] B. COX, K. ALCOCK et F. W. DERRICK. « The Oxidation and Corrosion of Zirconium and Its Alloys ». In : *Journal of Electrochemical Society, Vol 108* (1961), p. 129–133 (cf. p. 21).
- [30] N. BERERD et AL. « Zirconium surface modification under fission product irradiation Application to nuclear fuel cladding tubes ». In : *Surface and Coatings Technology, Vol 158-159* (2002), p. 473–476 (cf. p. 21).
- [31] M. BENEDICT, T. PIGFORD et H.W. LEVI. « Chap. 8 Properties of irradiated fuel and other reactor materials ». In : *McGraw Hill series in nuclear engineering* (1981) (cf. p. 22).
- [32] R. PANNETIER. « Vade-mecum du technicien nucléaire Tome II ». In : *Edition SCF du Bastet* (1980) (cf. p. 22).
- [33] A.E. WALTAR et A.B. REYNOLDS. « Fast Breeder Reactors ». In : *Pergamon Press* (1981) (cf. p. 23).
- [34] H. STEHLE. « Performance of oxide nuclear fuel in water-cooled power reactors ». In : *Journal of Nuclear Materials* 153 (1988), p. 3–15 (cf. p. 26).
- [35] H.J. MATZKE, H. BLANK, M. COQUERELLE et al. « Oxide fuel transients ». In : *Journal of Nuclear Materials* 166 (1989), p. 165–178 (cf. p. 26, 27).
- [36] M. MARCET, Y. PONTILLON, L. DESGRANGES et al. « High Burn up Structure Contribution to the Fission Gas Release under Transient Conditions ». In : *Proceedings of the Water Reactor Fuel Performance Meeting - WRFPM / Top Fuel 2009* (2009) (cf. p. 26).

- [37] M.E. CUNNINGHAM, M.D. FRESHLEY et D.D. LANNING. « Development and characteristics of the rim region in high burnup UO_2 fuel pellets ». In : *Journal of Nuclear Materials* 188 (1992), p. 141–148 (cf. p. 27).
- [38] Hj. MATZKE. « On the rim effect in high burnup UO_2 LWR fuels ». In : *Journal of Nuclear Materials* 189 (1992), p. 141–148 (cf. p. 27).
- [39] F. LEMOINE, D. BARON et P. BLANPAIN. « Key parameters for the High Burnup Structure formation thresholds in oxide fuels ». In : *Journal of Nuclear Materials* 248 (1997), p. 238–248 (cf. p. 27).
- [40] H. KLEYKAMP. « The chemical state of LWR high-power rods under irradiation ». In : *Journal of Nuclear Materials* 84 (1979), p. 109–117 (cf. p. 27).
- [41] H. KLEYKAMP. « Post-irradiation examinations and composition of the residues from nitric acid dissolution experiments of high-burnup LWR fuel ». In : *Journal of Nuclear Materials* 171 (1990), p. 181–188 (cf. p. 27).
- [42] J. REST et G.L. HOFMAN. « Dynamics of irradiation-induced grain subdivision and swelling in U_3Si_2 and UO_2 fuels ». In : *Journal of Nuclear Materials* 210 (1994), p. 187–210 (cf. p. 28).
- [43] L.E. THOMAS, C.E. BEYER et L.A. CHARIOT. « Microstructural analysis of LWR spent fuels at high burnup ». In : *Journal of Nuclear Materials* 188 (1992), p. 80–89 (cf. p. 28).
- [44] J. SPINO, A.D. STALIOS, H. SANTA CRUZ et al. « Stereological evolution of the rim structure in PWR-fuels at prolonged irradiation : Dependencies with burn-up and temperature ». In : *Journal of Nuclear Materials* 354 (2006), p. 66–84 (cf. p. 28).
- [45] J. SPINO, K. VENNIX et M. COQUERELLE. « Detailed characterisation of the rim microstructure in PWR fuels in the burn-up range 40-67 GWd/tM ». In : *Journal of Nuclear Materials* 231 (1996), p. 179–190 (cf. p. 28).
- [46] J. NOIROT, L. DESGRANGES et J. LAMONTAGNE. « Detailed characterisations of high burn-up structures in oxide fuels ». In : *Journal of Nuclear Materials* 372 (2008), p. 318–339 (cf. p. 28).
- [47] L. DESGRANGES, C. VALOT, B. PASQUET et al. « Measurement of xenon concentration in uranium dioxide (UO_2) with SIMS ». In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 215 (2004), p. 545–551 (cf. p. 28, 29).
- [48] L. DESGRANGES, C. VALOT, B. PASQUET et al. « A method for the quantification of total xenon concentration in irradiated nuclear fuel with SIMS and EPMA ». In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 266 (2008), p. 147–154 (cf. p. 28).

- [49] HJ MATZKE et J. SPINO. « Formation of the rim structure in high burnup fuel ». In : *Journal of Nuclear Materials* 248 (1997), p. 170–179 (cf. p. 29).
- [50] C. GRANDJEAN. « A state-of-the-art review of past programs devoted to fuel behaviour under LOCA conditions - part1 Clad Swelling and Rupture Assembly Flow Blockage ». In : *Note technique IRSN NT SEMCA-2005-313* () (cf. p. 30).
- [51] C. SARTORIS et AL. « A consistent approach to assess safety criteria for reactivity initiated accidents ». In : *Nuclear Engineering and Design, Vol 240* (2010), p. 57–70 (cf. p. 31).
- [52] T.P. MCLAUGHLIN et AL. « A review of criticality accidents - 2000 revision ». In : *Report LA-13638, Los Alamos National Laboratory* (2000) (cf. p. 31).
- [53] G.W. HATFIELD. « A reactor emergency with resulting improvements ». In : *Mechanical Engineering, 77* (1955), p. 124–126 (cf. p. 31).
- [54] W. MCKEOWN. « Idaho Falls : The untold story of America's first nuclear accident ». In : *ECW Press* (2003) (cf. p. 31).
- [55] D. BODANSKY. « Nuclear Energy : Principles, practices and prospects ». In : *2 ed., New York : Springer AIP Press* (2004) (cf. p. 31).
- [56] IAEA. « INSAG-7 : The Chernobyl accident - Updating of INSAG-1 ». In : *IAEA safety series report 75-INSAG-7* (1992) (cf. p. 31).
- [57] IAEA. « Reactivity accidents ». In : *Technical report series, report 354* (1993) (cf. p. 32).
- [58] M. ISHIKAWA et S. SHIOZAWA. « A study of fuel behaviour under reactivity initiated accident condition ». In : *Journal of Nuclear Materials, 95* (1980), p. 1–30 (cf. p. 33).
- [59] P. MACDONALD et AL. « Assessment of light-water reactor fuel damage during a reactivityinitiatedaccident ». In : *Nuclear Safety, 21(5)* (1980), p. 582–602 (cf. p. 33).
- [60] V. ASMOLOV et L. YEGOROVA. « The Russian RIA research program : Motivation, definition, execution and results ». In : *Nuclear Safety, 37(4)* (1996), p. 343–371 (cf. p. 33).
- [61] T. FUJISHIRO et AL. « Light water reactor fuel response during reactivity initiated accident experiments ». In : *Report TREE-1237 (NUREG/CR-0269), Idaho National Engineering Laboratory* (1978) (cf. p. 33).
- [62] B.A. COOK et Z.R. MARTINSON. « Reactivity initiated accident test series, test RIA 1-4 fuel behavior report ». In : *Report NUREG/CR-3938, US Nuclear Regulatory Commission* (1984) (cf. p. 33).
- [63] R.S. SEMKEN et AL. « Reactivity initiated accident test series, RIA scoping tests fuel behavior report ». In : *Report NUREG/CR-1360, US Nuclear Regulatory Commission* (1980) (cf. p. 33).

- [64] S.L. SEIFFERT et AL. « Reactivity initiated accident test series, Test RIA 1-1 (radial average fuel enthalpy of 285 cal/g) fuel behavior report ». In : *Report NUREG/CR-1465, US Nuclear Regulatory Commission* (1980) (cf. p. 33).
- [65] B.A. COOK et A. « Reactivity initiated accident test series, Test RIA 1-2 fuel behavior report ». In : *Report NUREG/CR-1842, US Nuclear Regulatory Commission* (1981) (cf. p. 33).
- [66] L. YEGOROVA. « Data base on the behavior of high burnup fuel rods with Zr-1%Nb cladding and UO₂ fuel (VVER type) under reactivity accident conditions ». In : *NUREG/IA-0156, US Nuclear Regulatory Commission* (1999) (cf. p. 34).
- [67] V.N. BOGDANOV et AL. « Irradiating complex on BGR reactor for simulation accidents of RIA type, » in : *Seventh international conference on nuclear criticality and safety, October 20-24, 2003, Tokai, Japan* (2003), p. 770–772 (cf. p. 34).
- [68] L. YEGOROVA. « Experimental study of narrow pulse effects on the behavior of high burnup fuel rods with Zr-1%Nb cladding and UO₂ fuel (VVER type) under reactivity initiated accident conditions : Program approach and analysis results ». In : *NUREG/IA-0213, US Nuclear Regulatory Commission* (2006) (cf. p. 34).
- [69] S. SAITO et AL. « Effects of rod pre-pressurization on light water reactor fuel behavior during reactivity initiated accident conditions ». In : *Journal of Nuclear Science and Technology, 19(4)* (1982), p. 289–306 (cf. p. 34).
- [70] M. ISHIKAWA et AL. « LWR fuel safety research with particular emphasis on RIA/LOCA and other conditions ». In : *Journal of Nuclear Science and Engineering, 26* (1989), p. 118–125 (cf. p. 34).
- [71] T. FUJISHIRO et AL. « Transient fuel behaviour of preirradiated PWR fuels under reactivity initiated accidents ». In : *Journal of Nuclear Materials, 188* (1992), p. 162–167 (cf. p. 34).
- [72] T. FUKETA. « High burnup BWR fuel response to reactivity transients and a comparison with PWR fuel response ». In : *24th NSRR technical review meeting, November 13-14, 2000, Tokyo, Japan.* (2000) (cf. p. 34).
- [73] T. NAKAMURA et AL. « NSRR RIA tests on PWR, BWR and MOX fuel ». In : *Fuel safety research specialist's meeting, March 4-5, 2002, Tokai, Japan : Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI Conf 2002-009* (2002), p. 71–83 (cf. p. 34).
- [74] C. MARQUIE et AL. « SURF : A test facility to investigate the safety of LMFBR and PWR fuels ». In : *International symposium on research reactor utilization, safety and management, September 6-10, 1999, Lisbon, Portugal : International Atomic Energy Agency, IAEA-SM-360* (1999), p. 132–133 (cf. p. 34).

- [75] F. BARRÉ et AL. « The Cabri reactor : Equipped for NEA Cabri International Project tests ». In : *NEA News*, 35(2) (2018), p. 6–9 (cf. p. 34).
- [76] V. BESSIRON. « Modelling of clad to coolant heat transfer for RIA applications ». In : *Journal of Nuclear Science and Technology*, 44(2) (2007), p. 211–221 (cf. p. 34).
- [77] V. BESSIRON. « The PATRICIA program on clad to coolant heat transfer during reactivity initiated accidents ». In : *Tenth international topical meeting on nuclear reactor thermal hydraulics (NURETH-10), October 5-9, 2003, Seoul, Korea* (2003) (cf. p. 34).
- [78] V. BESSIRON. « Clad-to-coolant heat transfer during a RIA transient : Analysis of the PATRICIA experiments, modelling and applications ». In : *Fuel safety research meeting, March 1-2, 2004, Tokyo, Japan* (2004) (cf. p. 34).
- [79] I. GUENOT-DELAHAIE et ALL. « 2D simulation of hydride blister cracking during a RIA transient with the fuel code ALCYONE ». In : *Nuclear Engineering and Technology* 50 (2018) (cf. p. 34–36).
- [80] INL. « Bison : A finite element-based nuclear fuel performance code ». In : <https://bison.inl.gov/> (2019) (cf. p. 34).
- [81] M. SUZUKI, H. SAITOU et T. FUKETA. « Analysis on split failure of cladding of high burnup BWR rods in reactivity-initiated accident conditions by RANNS code ». In : *Nuclear Engineering and Design* 236.2 (2006) (cf. p. 34).
- [82] P.V. FEDOTOV. « Estimation of water-water energy reactor fuel rod failure in design basis accidents ». In : *Water reactor fuel performance meeting, October 2-6, 2005, Kyoto, Japan* (2005), p. 835–847 (cf. p. 34).
- [83] Y. RASHID, R. DUNHAM et R. MONTGOMERY. « Fuel analysis and licensing code : FALCON MOD01. Volume 1 : Theoretical and numerical bases ». In : *Technical Report ANA-04-0666, EPRI, Palo Alto, CA* (2004) (cf. p. 34).
- [84] ME. CUNNINGHAM. « FRAPTRAN : a computer code for the transient analysis of oxide fuel rods ». In : *NUREGICR-6739 1* (2001) (cf. p. 34).
- [85] A. MOAL, V. GEORGETHUM et O. MARCHAND. « SCANAIR : A transient fuel performance code : Part One : General modelling description ». In : *Nuclear Engineering and Design* 280 (2014) (cf. p. 34).
- [86] V. GEORGETHUM, A. MOAL et O. MARCHAND. « SCANAIR a transient fuel performance code : Part two : Assessment of modelling capabilities ». In : *Nuclear Engineering and Design* 280 (2014) (cf. p. 34).
- [87] R. CALABRESE et F. VETTRAINO. « Testing of TRANSURANUS Code for RIA Analysis : The FK-1 NSRR Case ». In : *ICONE18-29098* (2011), p. 429–436 (cf. p. 34).

- [88] I.C. SAGRADO et L.E. HERRANZ. « Modeling RIA benchmark cases with FRAPTRAN and SCANAIR :A comparative exercise ». In : *Nuclear Engineering and Design* 278 (2014) (cf. p. 35).
- [89] N. ASAMI, M. NISHIKAWA et M. TAGUCHI. « Thermodynamics of Nuclear Materials ». In : *International Atomic Energy Agency, Vienna* (1975) (cf. p. 37).
- [90] M. BOBER, H.U. KAROW et K. SCHRETZMANN. « Vapor Pressure Measurements of Oxide Fuel Between 3000 and 5000 K Using Laser Heating ». In : *Nuclear Technology* 26 :2 (1975), p. 247–241 (cf. p. 37, 38, 45).
- [91] S.K. YAGNIK et D.R. OLANDER. « Surface temperature transients from pulsed laser heating of UO₂ ». In : *Journal of Nuclear Materials* 154 (1988), p. 253–262 (cf. p. 38, 48).
- [92] D.R. OLANDER, S.K. YAGNIK et C.H. TSAI. « Laserpulse vaporization of uranium dioxide and other refractory materials ». In : *Journal of Applied Physics* 64, 2680 (1988) (cf. p. 38).
- [93] C.S. VISWANADHAM, K.C. SAHOO et G.K DEY. « Laser pulse heating of nuclear fuels for simulation of reactor power transients ». In : *Pramana – Journal of physics Vol. 75, No. 6* (2010), p. 1267–1272 (cf. p. 39).
- [94] M AMAYA, M. HIRAI et R. IWASAKI. « Thermal conductivities of irradiated UO₂ and (U,Gd)O₂ pellets ». In : *Journal of Nuclear Materials* 300 (2002), p. 57–64 (cf. p. 39).
- [95] D. MANARA, C. RONCHI et SHEINDLIN. « Solidus and liquidus of UO₂+x from high-pressure melting experiments ». In : *High Temperatures – High Pressures, Vol. 35/36* (2003), p. 25–33 (cf. p. 39).
- [96] D. MANARA, R. PFLIEGER et M. SHEINDLIN. « Advances in the Experimental Determination of the Uranium–Oxygen Phase Diagram at High Temperature ». In : *International Journal of Thermophysics, Vol.26 No. 4* (2005) (cf. p. 39).
- [97] F. DE BRUYCKER, K. BOBORIDIS, R.J.M. KONINGS et al. « The melting behaviour of plutonium dioxide : A laser-heating study ». In : *Journal of Nuclear Materials* (2011), p. 166–172 (cf. p. 39).
- [98] D. PRIEUR, F. LEBRETON, L CAISSO et al. « Melting behaviour of americium-doped uranium dioxide ». In : *J. Chem. Thermodynamics* 97 (2016), p. 244–252 (cf. p. 39).
- [99] R BÖHLER, M.J. WELLAN, F. DE BRUYCKER et al. « Revisiting the melting temperature of NpO₂ and the challenges associated with high temperature actinide compound measurements ». In : *Journal of Applied Physics* 111, 113501 (2012) (cf. p. 39).

- [100] F. CAPPIA, R JOVANI-ABRIL, J. SPINO et al. « Laser melting of nanocrystalline uranium dioxide ». In : *Progress on Nuclear Energy* 72 (2014), p. 11–16 (cf. p. 39).
- [101] R BÖHLER, A. QUAINI, L. CAPRIOTTI et al. « The solidification behaviour of the UO₂–ThO₂ system in a laser heating study ». In : *Journal of Alloys and Compounds* 616, 5-13 (2014) (cf. p. 39).
- [102] C.T. WALKER, D. STAICU, M. SHEIDLIN et al. « On the thermal conductivity of UO₂ nuclear fuel at a high burn-up of around 100MWd/kgHM ». In : *Journal of Nuclear Materials* 350 (2006), p. 19–39 (cf. p. 40).
- [103] A. QUAINI, C. GUÉNEAU, S. GOSSÉ et al. « High temperature investigation of the solid/liquid transition in the PuO₂-UO₂-ZrO₂ system ». In : *Journal of Nuclear Materials* 467 (2015), p. 660–676 (cf. p. 40).
- [104] V.S. BAN et AL. « Mass spectrometric studies of laser-induced vaporization. II - The bismuth-selenium system. » In : *MATERIALS RESEARCH BULLETIN, VOL. 3, NO. 4* (1968), p. 337–348 (cf. p. 40).
- [105] M. JOSEPH, N. SIVAKUMAR et P. MANORAVI. « Studies on equation of state of high temperature nuclear materials ». In : *Annals of Nuclear Energy* 31 (2004), p. 1163–1175 (cf. p. 40).
- [106] R. PFLIEGER, J.Y. COLLE, I. IOSILEVSKIY et al. « Urania vapor composition at very high temperatures ». In : *Journal of Applied Physics* 109. 033501 (2011) (cf. p. 40).
- [107] M. JOSPEH et AL. « LASER-INDUCED VAPORIZATION-MASS SPECTROMETRY STUDIES ON REFRACTORY MATERIALS AT ULTRA-HIGH TEMPERATURES ». In : *Materials Under Extreme Conditions Chapter.15* (2017) (cf. p. 41).
- [108] R. PFLIEGER. « Thermodynamics of Refractory Nuclear Materials Studied by Mass Spectrometry of Laser-Produced Vapors ». In : *International Journal of Thermophysics, Vol. 26, No. 4* (2005) (cf. p. 42).
- [109] K SANKARAN, K SUNDARARAJAN et K.S. VISWANATHAN. « A matrix isolation FTIR investigation of laser-ablated uranium oxide in argon and nitrogen matrices ». In : *Bull. Matter. Sci., Vol. 22, No 4* (1999), p. 785–790 (cf. p. 42).
- [110] P.J. SKRODZKI, N.P. SHAH, N TAYLOR et al. « Significance of ambient conditions in uranium absorption and emission features of laser ablation plasmas ». In : *Spectrochimica Acta Part B* 125 (2016), p. 112–119 (cf. p. 42).
- [111] J. SMITH, C. SCOOT, B BENEFIEL et al. « Interface Characterization within a Nuclear Fuel Plate ». In : *Appl. Sci.* 2019, 9, 249 (2019) (cf. p. 42, 43).

- [112] FINK, J. K. *Review : Thermo-physical properties of uranium dioxide*. 2000 (cf. p. 47).
- [113] IAEA. « Thermophysical properties database of materials for light water reactors and heavy water reactors ». In : *AEA-TECDOC-1496* (2006) (cf. p. 47–57, 105, 189, 221, 222).
- [114] M. BAICHI. « Contribution à l'étude du corium d'un réacteur nucléaire accidenté : aspects puissance résiduelle et thermodynamique des systèmes U-UO₂ et UO₂-ZrO₂ ». In : *Thèse de docteur* (2001), p. 54 (cf. p. 48).
- [115] *Commission on Isotopic Abundances and Atomic Weights*. URL : <http://ciaaw.org/>. (Accessed : 2019-08-01) (cf. p. 48, 221).
- [116] M. BOBER, H.U. KAROW et K. WAGNER. « Study of the spectral reflectivity and emissivity of liquid ceramics ». In : *High Temp. - High Pressures 12* (1980), p. 161–168 (cf. p. 52).
- [117] OECD NUCLEAR ENERGY AGENCY. ORGANISATION FOR ECONOMIC CO-OPERATION AND DEVELOPMENT. « Nuclear fuel behaviour under reactivity-initiated accident (RIA) conditions : state -of-the-art report. » In : *NL-CEN-RSD-80-4, Argonne National Laboratory* (1981) (cf. p. 52).
- [118] M. BOBER, J. SINGER et K. WAGNER. « Determination of the optical constants of liquid UO₂ from reflectivity measurements ». In : *Proc. Eighth Symp. on Thermophysical Properties, Gaithersburg, MD, 1981, Vol II*, (1982), p. 234–244 (cf. p. 52, 72, 85).
- [119] M. BOBER, J. SINGER et K. WAGNER. « Bestimmung der optischen Konstanten von geschmolzenen Kernbrennstoffen ». In : *J. Nucl. Mater. 124* (1984), p. 120–128 (cf. p. 52, 72, 85).
- [120] P. RUELLO et AL. « Thermal variation of the optical absorption of UO₂ : determination of the small polaron self-energy ». In : *CRC* (2004), p. 46–54. DOI : [10.1016/j.jnucmat.2004.03.002](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2004.03.002). URL : <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2004.03.002> (cf. p. 53, 54, 56, 57, 60, 72, 85).
- [121] H. SHI, Chu M. et P. ZHANG. « Optical properties of UO₂ and PuO₂ ». In : *Journal of Nuclear Material 400* (2010), p. 151–156 (cf. p. 54, 85, 186).
- [122] J. K. HOHORST. « Code Manual, Vol. 4 : MATPRO - a library of materials properties for light-water-reactor accident analysis ». In : (1990) (cf. p. 58, 59, 220, 222).
- [123] *COMSOL Multiphysics*. URL : <https://www.comsol.fr/products>. (Accessed : 2019-08-01) (cf. p. 59).
- [124] S. LUNT. « Determining the Indices of Refraction of Reactively Sputtered Uranium Dioxide Thin Films from 46 to 584 Angstroms ». In : *Master Thesis, Dept. of Physics and Astronomy* (2002) (cf. p. 76).

- [125] R. SANDBERG, D. ALLRED, J. BISSEL et al. « Uranium Oxide as a Highly Reflective Coating from 100-400 eV ». In : *AIP Conference Proceedings 705, 796* (2004) (cf. p. 76).
- [126] P. MENEGON, L. DESGRANGES, Y. PONTILLON et al. « Evidence of two gas release kinetics during the oxidation of an irradiated PWR UO₂ fuel ». In : *J. Nucl. Mater.*, 378, 1 (2008), p. 1–8 (cf. p. 93).
- [127] Y. PONTILLON, S. BERNARD, J. BONNIN et al. « Nuclear Fuel Performance Studies : From irradiation to storage - An overview of the experimental facilities at the CEA Cadarache ». In : *European Nuclear Conference*. Barcelona, Spain, 2011 (cf. p. 93).
- [128] J. NOIROT, Y. PONTILLON et S YAGNIK. « Fission gas release behaviour of a 103 GWd/tHM fuel disc during a 1200 °C annealing test ». In : *J. Nucl. Mater.*, 446 (2014), p. 163–171 (cf. p. 93).
- [129] T. MALLET. « Développement d'un four laser ». In : *Rapport de stage de 2A d'école d'ingénieur* (2016) (cf. p. 94).
- [130] F. et al. GRISCH. *Mesures de températures dans les gaz et les flammes - Mesures intrusives et mesures optiques intégrées*. URL : <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/mesures-analyses-th1/thermometrie-par-contact-42651210/mesures-de-temperatures-dans-les-gaz-et-les-flammes-r2752/>. (Accessed : 2020-01-21) (cf. p. 101).
- [131] Edmund OPTICS. *Testing and Targets*. URL : <https://www.edmundoptics.fr/knowledge-center/application-notes/imaging/testing-and-targets/>. (Accessed : 2020-01-21) (cf. p. 110).
- [132] R. G. SHEPPARD, D. MORGAN, D. M. MATHES et al. « Properties and Characteristics of Graphite for the EDM Industry ». In : *5th Printing* (2002) (cf. p. 116, 117).
- [133] F.P. BUNDY. « Pressure-Temperature phase diagram of elemental carbon ». In : *Physica A* (1989), p. 169 (cf. p. 117, 118).
- [134] A. CEZAIRLIYAN et F. RIGHINI. « Measurements of Heat Capacity, Electrical Resistivity, and Hemispherical Total Emittance of Two Grades of Graphite in the Range of 1500 to 3000K by a Pulse Heating Technique ». In : *Rev. int. Htes Temp. et Refract.* 12, 128 (1975) (cf. p. 118).
- [135] G. W. AUTIO et E. SCALA. « The normal spectral emissivity of isotropic and anisotropic materials ». In : *Carbon* 4, 13 (1966) (cf. p. 119).
- [136] F. WANG, L. CHENG, H. MEI et al. « Effect of Surface Microstructures on the Infrared Emissivity of Graphite ». In : *Int J Thermophys* 35, 62 (2014) (cf. p. 119).

- [137] G. NEUER. « Spectral and Total Emissivity Measurements of Highly Emitting Materials ». In : *International Journal of Thermophysics* 16, 257 (1995) (cf. p. 119, 120).
- [138] T. MATSUMOTO et A. ONON. « Specific Heat Capacity and Emissivity Measurements of Ribbon-Shaped Graphite Using Pulse Current Heating ». In : *Int J Thermophys* 16, 267 (1995) (cf. p. 120).
- [139] S. KRENEK, D. GILBERT, D. R. ANHALT et al. « Improving the Dynamic Emissivity Measurement Above 1000K by Extending the Spectral Range ». In : *Int J Thermophys* 36, 8 (2018), p. 1713–1725. DOI : [10.1007/s10765-015-1866-7](https://doi.org/10.1007/s10765-015-1866-7). URL : <https://doi.org/10.1007/s10765-015-1866-7> (cf. p. 120, 121).
- [140] D. URBAN, S. KRENEK, K. ANHALT et al. « Improving the Dynamic Emissivity Measurement Above 1000K by Extending the Spectral Range ». In : *Int J Thermophys* 39, 10 (2018) (cf. p. 121).
- [141] B. HAY et AL. « Traceability Improvement of High Temperature Thermal Property Measurements of Materials for New Fission Reactors ». In : *IEEE Transactions on Nuclear Science* 61, 2112 (2014) (cf. p. 121, 122).
- [142] A. E. GONZALES, N. C. HERR et G. P. PERRAM. « Experimental study of laser irradiated graphite oxidation using IFTS ». In : *Combustion and Flame* 192, 180 (2018) (cf. p. 121).
- [143] D. REN, H. TAN, Y. XUAN et al. « Apparatus for Measuring Spectral Emissivity of Solid Materials at Elevated Temperatures ». In : *Int J Thermophys* 37, 51 (2016) (cf. p. 122).
- [144] T. FU, J. DUAN, J. TANG et al. « Measurements of the directional spectral emissivity based on a radiation heating source with alternating spectral distributions ». In : *International Journal of Heat and Mass Transfer* 90 (2015), p. 1207–1213 (cf. p. 123).
- [145] L. BIASETTO, M. MANZOLARO et A. ANDRIGHETTO. « Emissivity measurements of opaque gray bodies up to 2000 °C by a dual-frequency pyrometer ». In : *Eur. Phys. J. A* 38 (2008), p. 167–171 (cf. p. 123, 124).
- [146] A. V. KOSTANOVSKII, M. G. ZEODINOV et Kostanovskaya. M. E. « The Determination of Thermal Conductivity and Emissivity of Graphite at High Temperatures ». In : *High Temperature* 43 (2005), p. 793–795 (cf. p. 124).
- [147] T. PAVLOV, L. VLAHOVIC, D. STAICU et al. « A new numerical method and modified apparatus for the simultaneous evaluation of thermo-physical properties above 1500K : A case study on isostatically pressed graphite ». In : *Thermochimica Acta* 652 (2017), p. 39–52 (cf. p. 124).
- [148] S. GALAL YOUSEF, P. SPERFELD et J. METZORF. « Measurement and calculation of the emissivity of a high-temperature black body ». In : *Metrologia*, 37. (2000), p. 365–368 (cf. p. 124).

- [149] H. WATANABE et Y. YAMASHITA. « Multiple pulse-heating experiments with different current to determine total emissivity, heat capacity, and electrical resistivity of electrically conductive materials at high temperatures ». In : *Review of Scientific Instruments* 83 014904 (2012) (cf. p. 124).
- [150] R. J. PAPOULAR et R. PAPOULAR. « Some Optical Properties of graphite from IR to millimetric wavelengths ». In : *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society MNRAS* 443 (2014), p. 2974–2982 (cf. p. 125–127).
- [151] H.E. BENETT et J.O. PORTEUS. « Relation Between Surface Roughness and Specular Reflectance at Normal Incidence ». In : *Journal of the Optical Society of America Vol. 51 (2)* (1961), p. 123–129 (cf. p. 129).
- [152] M. DUOCASTELLA et C.B. ARNOLD. « Bessel and annular beams for materials processing ». In : *Laser Photonics Rev. 6, No. 5* (2012), p. 607–621 (cf. p. 154, 156).
- [153] J. DURIN, J. MICELI et J.H. EBERLY. « diffraction-free beams ». In : *Phys. Rev. Lett.* 58 (1987), p. 1499 (cf. p. 155, 156).
- [154] R. TUDOR, M. KUSKO, C KUSKA et al. « Beam shaping for phase singularities ». In : *Romanian journal of information, science and technology, volume 17, number 4* (2014), p. 389–404 (cf. p. 155, 156).
- [155] J. H. MCLEOD. « The Axicon : A New Type of Optical Element ». In : *J. Opt. Soc. Am.* 44 (1954), p. 592 (cf. p. 155, 156).
- [156] M. RIOUX, R TREMBLAY et P.A. BELANGER. « Linear, annular, and radial focusing with axicons and applications to laser machining ». In : *Applied optics/ Vol.17, No.10* (1978) (cf. p. 156, 157).
- [157] J. ARLT, T. HITOMI et K. DHOLAKIA. « Atom guiding along Laguerre-Gaussian and Bessel light beams ». In : *Appl. Phys. B* 71 (2000), p. 549–554 (cf. p. 156, 166).
- [158] E. MCLEOD, A.B. HOPKINS et C.B. ARNOLD. « Multiscale Bessel beams generated by a tunable acoustic gradient index of refraction lens ». In : *Opt. Lett.* 31 (2006), p. 3155–3157 (cf. p. 156, 158).
- [159] W.-X. CONG et AL. « Generation of nondiffracting beams by diffractive phase elements ». In : *Journal of the Optical Society of America A* 15 (1998), p. 2362–2364 (cf. p. 157).
- [160] D. ZENG et AL. « Temperature distributions due to annular laser beam heating ». In : *Journal of Laser Applications* 17 (2005), p. 256 (cf. p. 158).
- [161] A. IZDEBSKAYA, Shvedov. V. et A. VOLYAR. « Generation of higher-order optical vortices by a dielectric wedge ». In : *Opt. Lett.* 30 (2005), p. 2472 (cf. p. 158).
- [162] C.M. JEFFERSON et J.A. HOFFNAGLE. « Aspheric Laser Beam Reshaper Applications Guide ». In : *IBM Almaden Research Center* () (cf. p. 158).

- [163] H. MA, P. ZHOU, X. WANG et al. « Near-diffraction-limited annular flattop beam shaping with dual phase only liquid crystal spatial light modulators ». In : *Optical Society of America* (2010) (cf. p. 158).
- [164] T. TSAI, E. MCLEOD et C.B. ARNOLD. « Generating Bessel beams with a tunable acoustic gradient index of refraction lens ». In : *International Society for Optical Engineering (SPIE) VOL. 6326, 63261F* (2006) (cf. p. 158).
- [165] A. MERMILLOD-BLONDIN, E. MCLEOD et C.B. ARNOLD. « Dynamic pulsed-beam shaping using a TAG lens in the near UV ». In : *Appl Phys A* (2008) (cf. p. 158).
- [166] O. WILSTRAND. « Intensity distribution conversion from Gaussian to Top-Hat in a single-mode fiber connector. Comparative study of optical simulation software FRED and ZEMAX ». In : *Master's Thesis* (2013) (cf. p. 166).
- [167] Schindelin J. *Fiji is just ImageJ*. URL : <https://fiji.sc/#>. (Accessed : 2019-09-18) (cf. p. 173).
- [168] G. BRINDELLE. « Etude du relâchement de gaz de fission entrant 600°C et 800°C lors de transitoire thermique sur combustible irradié ». In : *Thèse de doct. Université Paris-Saclay* (2017). URL : <https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-01698428> (cf. p. 183).
- [169] François HAMON. « Modèle d'endommagement de MAZARS ». In : *Fascicule r7.01 : Modélisations pour le Génie Civil et les géomatériaux* (2013) (cf. p. 192).
- [170] ISO. *Organisation internationale de normalisation*. URL : https://fr.wikipedia.org/wiki/Organisation_internationale_de_normalisation. (Accessed : 2020-01-15) (cf. p. 214).
- [171] AFNOR. *Association française de normalisation*. URL : https://fr.wikipedia.org/wiki/Association_fran%C3%A7aise_de_normalisation. (Accessed : 2019-03-15) (cf. p. 214).
- [172] M. W. Jr. CHASE. « NIST-JANAF Thermochemical Tables ». In : *Journal of Physical and Chemical Reference Data, No.9, Fourth Edition, Part I, Al-Co* (1998), p. 161–168 (cf. p. 214–216).
- [173] D. R. LIDE. « Handbook of Chemistry and Physics ». In : *CRC* (2007) (cf. p. 215, 216, 220).
- [174] Y. S. TOULOUKIAN, R. W. POWEL, C. Y. HO et al. « Thermal Diffusivity ». In : *Thermophysical properties of matter* (1973) (cf. p. 215, 217).
- [175] G. STEINBORN, G. TZSCHICHHOLZ, J. GUENSTER et al. « Porous TiO₂-Y₂O₃ Ceramics with Specific Infrared-Optical Properties ». In : *J. Ceram. Sci. Tech., 02* (2011), p. 183–190. DOI : [10.1.1/jpb001](https://doi.org/10.1.1/jpb001). URL : <http://dx.doi.org/10.4416/JCST2011-00011> (cf. p. 215, 217, 218).

- [176] D. L. WOOD et K. NASSAU. « Refractive index of cubic zirconia stabilized with yttria ». In : *APPLIED OPTICS / Vol. 21, No. 16* (1982), p. 2978–2981 (cf. p. 215, 218).
- [177] G. WITZ et AL. « Phase Evolution in Yttria-Stabilized Zirconia Thermal Barrier Coatings Studied by Rietveld Refinement of X-Ray Powder Diffraction Patterns ». In : *Journal of the American Ceramic Society 90(9)* (2007), p. 2935–2940 (cf. p. 215).
- [178] JAHM. *Material Properties Database software*. URL : <https://www.jahm.com>. (Accessed : 2019-08-01) (cf. p. 216, 219, 223–225).
- [179] MERSEN. *PROPERTIES OF CALCARB*. URL : <https://www.mersen.com/sites/default/files/publications-media/3-gs-calcarb-grade-cbcf-15-2000-mersen.pdf>. (Accessed : 2019-03-15) (cf. p. 217).
- [180] M. BOULOZ, L. MARTIN, A. BOULOZ et al. « Effect of the dopant content on the physical properties of Y2O3–ZrO2 and CaO–ZrO2 thin films produced by evaporation and sputtering techniques ». In : *Materials Science and Engineering B67* (1999), p. 122–131 (cf. p. 218).
- [181] G. MARCAUD et AL. « High-quality crystalline yttria-stabilized-zirconia thinlayer for photonic applications ». In : *Physical Review Materials, American Physical Society, 2018, 2 (3)*, (2018), p. 35202–35202. DOI : [10.1103/PhysRevMaterials.2.035202](https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.2.035202). URL : <https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.2.035202> (cf. p. 218).
- [182] T. VIDAL. « Rapport de stage ingénieur de 5A ». In : *Polytech Marseille - Matériaux* (2016) (cf. p. 219).
- [183] I. TURQUE. « Effet de fortes teneurs en hydrogène sur les propriétés métallurgiques et mécaniques des gaines en alliage de zirconium après incursion à haute température ». In : *High Temp. - High Pressures 12* (2016). URL : <https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-01708252> (cf. p. 220).
- [184] J.P. ABRIATA et AL. « Modèle d'endommagement de MAZARS ». In : *Bulletin of Alloy Phase Diagrams Vol. 4 No. 2* (1983) (cf. p. 221).
- [185] D. C. HARRIS et G. TURRI. « Optical and Thermal Properties of Spinel with Revised (Increased) Absorption at 4 to 5 MWavelengths and Comparison with Sapphire ». In : *Optical Engineering , 52(8)*. (2013). DOI : [10.1117/1.OE.52.8.087113](https://doi.org/10.1117/1.OE.52.8.087113). URL : <https://doi.org/10.1117/1.OE.52.8.087113> (cf. p. 223).
- [186] F. SCUTH, K. S. W. WING et J. WEITKAMP. « Handbook of Porous Solids ». In : *Wiley-VCH* (2002). DOI : [10.1002/9783527618286](https://doi.org/10.1002/9783527618286). URL : <http://dx.doi.org/10.1002/9783527618286> (cf. p. 224).
- [187] Edmund OPTICS. *5mm Diamètre, Non Traité, Fenêtre en Saphir*. URL : <https://www.edmundoptics.fr/p/5mm-diameter-uncoated-sapphire-window/4989/>. (Accessed : 2019-09-18) (cf. p. 225).