



HAL
open science

Etude du comportement à rupture de la zone HBS du combustible UO₂ dans les réacteurs à eau pressurisée, par une approche micromécanique en condition accidentelle d'APRP

Coralie Esnoul

► **To cite this version:**

Coralie Esnoul. Etude du comportement à rupture de la zone HBS du combustible UO₂ dans les réacteurs à eau pressurisée, par une approche micromécanique en condition accidentelle d'APRP. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Aix-Marseille Université, 2018. Français. NNT: . tel-03338002

HAL Id: tel-03338002

<https://theses.hal.science/tel-03338002>

Submitted on 8 Sep 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.



Université Aix-Marseille
Ecole Doctorale 353 Sciences pour l'ingénieur : mécanique, physique,
micro et nanoélectronique

THÈSE présentée
pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITE AIX-MARSEILLE
Spécialité : Mécanique des Solides
par
Coralie ESNOUL

Etude du comportement à rupture de la zone HBS du
combustible UO_2 dans les réacteurs à eau pressurisée,
par une approche micromécanique en condition
accidentelle d'APRP

Soutenue le 07/12/2018 devant le jury :

Serge KRUCH	Directeur de recherche ONERA, Centre de Châtillon	Rapporteur
Yann MONERIE	Professeur des universités, LMGC Montpellier	Rapporteur
Jacques BESSON	Directeur de recherche CNRS, Mines ParisTech	Examineur
Carole NADOT-MARTIN	Professeur des universités, ENSMA Poitiers	Examineur
Rodrigue LARGENTON	Ingénieur-Chercheur Expert EDF, Centre des Renardières	Encadrant
Bruno MICHEL	Expert Senior CEA, Centre de Cadarache	Encadrant
Jean-Claude MICHEL	Directeur de recherche CNRS, LMA Marseille	Directeur de thèse
Daniel BARON	Expert EDF Senior	Invité

Établissements partenaires :

LMA

(Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique)

Centre National de la Recherche Scientifique

CNRS - 4 impasse Nikola Tesla 13453 Marseille Cédex 13

CEA Cadarache

Service SESC

(Etudes et Simulation du comportement des Combustibles)

Commissariat à l'énergie atomique

Centre de Cadarache - 13108 Saint-Paul-Lez-Durance Cédex

EDF Les Renardières

Département MMC

(Matériaux et Mécanique des Composants)

Electricité de France

Centre des Renardières - 77818 Moret-sur-Loing Cédex

Glossaire

- APRP : Accident de Perte de Réfrigérant Primaire
- ASN : Autorité de sureté Nucléaire
- BI : Brèche Intermédiaire
- CH : Contrainte Homogène (sur le contour)
- CL : Conditions aux Limites
- CLP : Conditions aux Limites Périodiques
- DH : Déformations homogènes (sur le contour)
- EPMA : Electron Probe Micro-Analysis
- FEM : Finite Element Method
- FIB : Focused Ion Beam
- I(m)PG : Interaction (Mécanique) Pastille-Gaine
- JDG : Joints De Grain
- HBS : High Burn-up Structure
- MEB : Microscopie Électronique à Balayage
- MET : Microscopie Électronique à Transmission
- MHE : Milieu Homogène Equivalent
- MOX : Mixed OXyde
- MZC : Modèle de Zone Cohésive
- NTFA : Nonuniform Transformation Field Analysis
- REP : Réacteur à Eau Pressurisée.
- RGF : Relâchement de Gaz de Fission
- RIA : Reactivity Initiated Accident.
- SIMS : Second Ion Mass Spectrometry
- UO_2 : Dioxyde d'uranium
- VER : Volume Élémentaire Représentatif
- XFEM : Extended Finite Element Method
- ZC : Zone Cohésive

Table des matières

Introduction générale	4
1 Réacteur à Eau Pressurisée : état de l'art succinct sur le comportement du crayon combustible en conditions normale et accidentelle - Accident par Perte de Réfrigérant Primaire	7
1.1 Notions générales sur les Réacteurs à Eau Pressurisée et contexte industriel lié à l'accident APRP	7
1.1.1 Principe de fonctionnement	7
1.1.2 Assemblage et crayon combustible	8
1.1.3 Description succincte de l'évolution du crayon combustible sous irradiation en fonctionnement normal	11
1.1.4 Description succincte de l'évolution du crayon combustible en condition accidentelle APRP	14
1.2 Description détaillée des phénomènes subis par le combustible UO_2 en zone périphérique, à fort taux de combustion et en conditions normales et accidentelles.	17
1.2.1 Zone HBS du combustible UO_2 irradié à fort taux de combustion en fonctionnement normal : présentation des mécanismes de formation et de la microstructure associée	18
1.2.2 Zone HBS du combustible UO_2 irradié à fort taux de combustion en fonctionnement normal : comportement mécanique en conditions d'APRP	25
2 Principe de l'approche micromécanique suivie et choix des méthodes pour l'étude du comportement à rupture de la zone HBS du combustible UO_2	27
2.1 Motivation	27
2.2 Représentation	28
2.2.1 Séparation des échelles	28
2.2.2 Représentation du VER	29
2.3 Localisation	30
2.3.1 Principe	30
2.3.2 Conditions aux limites	30
2.3.3 Brève revue des méthodes existantes pour l'analyse de la fissuration	32
2.3.4 Modèles de zones cohésives (MZC)	33
2.3.5 Approche variationnelle de la mécanique de la rupture	35
2.4 Homogénéisation	37
2.4.1 Motivation	37
2.4.2 Analyse par champs de transformation non uniformes (NTFA)	38
2.5 Bilan du chapitre	42
3 Représentation de la zone HBS du combustible UO_2	43
3.1 Approche numérique	44

3.1.1	Présentation des outils numériques : ALCYONE - CARACAS	44
3.1.1.1	ALCYONE code de simulation du comportement thermomécanique du crayon combustible	44
3.1.1.2	CARACAS : modèle de gaz avancé	46
3.1.2	Simulation d'un transitoire accidentel de type APRP sur un crayon combustible irradié à fort taux de combustion	58
3.2	Approche expérimentale	62
3.2.1	Moyens d'acquisitions expérimentaux pour obtenir le spectre diamétral des bulles HBS et leur fraction volumique par classe diamétrale - Résultats.	62
3.2.1.1	Zone HBS sur pastilles irradiées	62
3.2.1.2	Les disques HBS	63
3.2.2	Moyens d'acquisitions expérimentaux pour obtenir la pression dans les bulles HBS et résultats	66
3.2.2.1	Loi d'état pour calculer la pression dans les bulles	66
3.2.2.2	Méthode d'acquisitions expérimentales pour évaluer la pression dans les bulles et résultats	67
3.2.2.3	Confrontation des résultats expérimentaux de la pression dans les bulles HBS aux résultats numériques	70
3.2.3	Collecte des informations pour générer un VER de la zone HBS et son chargement local - Bilan des approches numériques et expérimentales	72
3.3	VER 3D de la zone HBS : Représentation - Validation	73
3.3.1	Représentation géométrique de nos VER de la zone HBS - algorithme et outil utilisés	73
3.3.1.1	Algorithme de tirage	73
3.3.1.2	Adaptation du spectre diamétral des bulles HBS pour générer nos VER de la zone HBS	74
3.3.2	Validation géométrique de ces VER de la zone HBS	75
3.3.2.1	Définition de la covariance	76
3.3.2.2	Étude de la covariance sur les VER sélectionnés	78
3.4	Conclusion du chapitre	82
4	Analyse en champs complets avec comportement linéaire	85
4.1	Détermination d'un VER pour les fuseaux HBS par l'étude de convergence au maillage	85
4.1.1	Procédure de maillage	85
4.1.2	Écriture des conditions de périodicité	86
4.1.3	Calculs linéaires pour la convergence au maillage	88
4.1.3.1	Le problème mécanique élastique	88
4.1.3.2	Choix d'éléments linéaires ou quadratiques pour les calculs élastiques	89
4.1.3.3	Méthode de convergence au maillage (illustrée sur le fuseau pastille polydisperse)	92
4.1.4	Bilan : choix du maillage convergé pour chaque fuseau HBS	94
4.2	Résultats des calculs élastiques	94
4.2.1	Influence du tirage	94
4.2.2	Nombre de sites d'amorçage	97
4.3	Bilan du chapitre	100
5	Simulations éléments finis avec loi de comportement non linéaire à l'échelle locale	101
5.1	Modèle d'endommagement local « DDIF2 »	101

5.1.1	Descriptif de la loi	101
5.1.2	Choix des paramètres d'entrée de la loi de comportement	105
5.1.3	Pilotage du chargement des bulles HBS en déformation.	111
5.1.4	Résolution numérique : convergence forcée et adaptation du pas de temps	114
5.2	Résultats de calculs avec un comportement non linéaire	115
5.2.1	Pression moyenne dans les bulles	116
5.2.2	Modes de fissuration	116
5.2.3	Étude de la fragmentation	117
5.3	Discussions de la méthode établies et limites des calculs non linéaires	121
5.3.1	Chargement thermique	121
5.3.2	Influence du tirage sur la fragmentation	122
5.4	Validation des résultats	125
5.4.1	Recalage de la contrainte à rupture sur un essai de recuit thermique	125
5.4.2	Comparaison des fragments formés	128
5.5	Conclusion du chapitre	128
6	Établissement d'un critère de rupture homogénéisé pour la zone HBS de la pastille combustible UO_2	129
6.1	Obtention du critère	130
6.2	Calcul des paramètres du critère	132
6.3	Choix des fonctions $A(\alpha)$ et $w(\alpha)$	133
6.4	Validation du critère	134
6.5	Bilan du chapitre	135
	Conclusion générale	136
	Références	141
	Liste des tableaux	157
	Liste des figures	157
	Annexes :	157
A	Détermination de la pression dans les bulles HBS - Techniques expérimentales	159
A.1	Spectrométrie de Masse à Ionisation Secondaire (SIMS)	159
A.2	Microsonde électronique (EPMA)	160
A.3	Microscope Électronique à Balayage (MEB)	161
A.4	Sonde ionique focalisée(FIB)	162
B	Coefficient de diffusion atomique du xénon dans le grain D_{gb}^{Xe} pour CARACAS [JSB⁺14]	165
C	Gonflement des bulles intragranulaires et des bulles HBS	167
D	Convergence au maillage sur fuseau pastille monodisperse	169

E Résultats élastiques sur 20 tirages du fuseau pastille polydisperse	171
F Système implicite de la loi de comportement DDIF2	175
Résumé / Summary	178

Introduction générale

L'énergie nucléaire est la principale source d'électricité en France, représentant 76,5 % de la production nationale en 2015. L'électricité est générée par les 58 Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) du parc français grâce à l'extraction de la chaleur issue de la réaction de fission de l'uranium.

L'uranium est conditionné sous la forme de pastilles de dioxyde d'uranium (UO_2), un matériau polycristallin de la famille des céramiques. Ces pastilles sont empilées dans des gaines métalliques. L'ensemble combustible et gaine est appelé un crayon combustible. En fonctionnement normal, le combustible subit des transformations physico-chimiques sous les effets de l'irradiation. En fin de vie du combustible, après un temps suffisamment long, ces transformations modifient profondément le combustible qui se restructure dans sa partie la plus irradiée en périphérie de pastille. Cette zone restructurée est communément appelée zone High Burnup Structure (HBS), constituée de grains sub-microniques (environ dix fois inférieurs à la taille de grain initiale) et d'une fraction volumique de bulles inter-granulaires de gaz de fission relativement conséquente entre 10 à 15 % en condition de fonctionnement normal.

Lors d'un Accident de Perte de Réfrigérant Primaire (APRP), une brèche dans le circuit de refroidissement primaire provoque le dénoyage du cœur. Alors que le réacteur est à l'arrêt, la disparition du réfrigérant ne permet plus l'extraction de la puissance résiduelle du combustible. La température au sein des pastilles et au niveau de la gaine augmente fortement, ce qui peut créer le ballonnement de la gaine, déformation importante liée à la transition de phase qui s'opère avec la température et qui peut entraîner l'éclatement de la gaine. Au cours de ce processus et pour des combustibles fortement irradiés, une fragmentation des pastilles est observée. A très fort taux de combustion, il existe une possibilité qu'une partie des fragments se relocalisent dans le ballon et que les plus petits soient expulsés hors du crayon lors de l'éclatement de la gaine. Du point de vue sûreté, il est primordial d'évaluer la fraction volumique et la taille des fragments potentiellement éjectables hors du crayon combustible, ainsi que la quantité de gaz de fission relâchée au sein du circuit primaire. Par sa position en périphérie de pastille, les fragments de la zone HBS sont les plus susceptibles d'être relocalisés et éjectés en cas d'éclatement de la gaine. Pour ces raisons, nos travaux se focalisent sur le comportement mécanique de la zone HBS en condition d'APRP. L'une des hypothèses avancées aujourd'hui pour expliquer la fragmentation du combustible fortement irradié est que les bulles de gaz de fission inter-granulaires de la zone HBS (produites par l'irradiation) montent en pression lors du transitoire thermique APRP et conduisent à l'endommagement et à la décohésion des Joints De Grains (JDG) lorsque la contrainte à rupture de ceux-ci est atteinte. Dès lors les gaz de fission contenus dans les bulles finissent par être relâchés dans les volumes libres du crayon qui participent à l'élévation de la pression interne du crayon, si l'endommagement initié aux JDG forme des fissures débouchantes.

L'objectif de la thèse est d'étudier le comportement de la zone HBS et de valider cette hypothèse de fragmentation en développant un modèle de rupture qui permette de prévoir l'instant de rupture dans le matériau et d'évaluer l'état de fragmentation en conditions d'APRP. L'approche choisie est une approche micromécanique qui prend en compte la microstructure de la zone HBS. Le développement de ce modèle structure le manuscrit en six chapitres :

— le **Chapitre 1** présente un état de l'art succinct du comportement du combustible UO_2 irradié

en REP en conditions normale et accidentelle. Les notions générales sur le fonctionnement des REP ainsi que les phénomènes subis par le combustible UO_2 sous irradiation y sont abordés, et en particulier la formation de la structure HBS en périphérie de pastille à fort taux de combustion. L'accident de perte de réfrigérant primaire est présenté, ainsi que les mécanismes de fragmentation de la zone HBS.

- le **Chapitre 2** s'attache à décrire la méthodologie mise en place pour développer l'approche micromécanique. L'objectif de ce chapitre est d'exposer les principes mécaniques nécessaires pour les trois étapes de la méthode multiéchelle qui est employée : i) la représentation, ii) la localisation et iii) l'homogénéisation.
- le **Chapitre 3** est consacré à la mise en œuvre de la première étape de l'approche micromécanique : la représentation. Il s'agit ici de présenter la méthode d'acquisition des informations morphologiques de la microstructure HBS. Les données peuvent être d'origine numérique ou expérimentale. Les données numériques sont issues du code thermomécanique crayon combustible ALCYONE [MGS⁺14] du CEA, qui permet de simuler des transitoires thermiques APRP. Couplés au modèle de gaz de fission CARACAS [JSB⁺14], ces calculs donnent accès à une valeur moyenne des paramètres d'intérêt pour modéliser la zone HBS : le diamètre et la fraction volumique des bulles HBS ainsi que la pression dans ces bulles. Ces résultats seront confrontés aux observations microscopiques de la zone HBS qui montrent l'existence d'une répartition des tailles de bulles et déterminent la pression interne dans les bulles via une loi d'état. Ces paramètres sont acquis pour générer un Volume Équivalent Représentatif (VER) de la zone HBS. Les outils de génération, les résultats obtenus et la validation géométrique des VER seront présentés dans cette partie.
- les **Chapitres 4 et 5** décrivent l'étape de localisation. Il s'agit de réaliser sur les VER de la zone HBS (déterminés à l'étape de représentation), des calculs en champs complets utilisant une méthode par éléments finis. Le chapitre 4 décrit les calculs préliminaires à l'étude de la fissuration en considérant un comportement élastique de la matrice. Cette hypothèse permet une première étude simplifiée du comportement du VER HBS sous la pression des bulles. Le chapitre 5 présente les calculs de fissuration, où une loi de comportement endommageante adoucissante est considérée dans la matrice. Une première partie décrit la loi de comportement DDIF2 choisie pour cette étude et discute des propriétés à rupture de la zone HBS. Une seconde partie propose l'analyse des résultats de simulations. Ces calculs aboutissent à l'identification de modes de fissuration, qui donnent l'état du matériau pour un chargement en pression donné dans les bulles. Ces modes sont utilisés comme argument d'entrée du modèle d'homogénéisation, présenté dans le chapitre suivant.
- le **Chapitre 6** décrit l'étape d'homogénéisation. Nous présentons le critère d'homogénéisation proposé. Un premier paragraphe s'attache à la description du critère et de ses équations, en lien avec la formulation variationnelle de la mécanique de la rupture [FM88] et la méthode d'homogénéisation NTFA [MS16]. Le principe d'identification du modèle et les calculs nécessaires à effectuer sur le VER sont présentés.

Chapitre 1

Réacteur à Eau Pressurisée : état de l'art succinct sur le comportement du crayon combustible en conditions normale et accidentelle - Accident par Perte de Réfrigérant Primaire

1.1 Notions générales sur les Réacteurs à Eau Pressurisée et contexte industriel lié à l'accident APRP

1.1.1 Principe de fonctionnement

Les réacteurs nucléaires construits en France sont issus de la filière des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP). Le territoire compte 58 réacteurs en fonctionnement dont 34 réacteurs ont une puissance de 900 MWe, 20 réacteurs d'une puissance de 1300 MWe et 4 réacteurs de 1450 MWe. En 2015, ils contribuaient à 76,5 % de la production nationale d'électricité. En 2017, les REP constituent les deux tiers des modèles de réacteurs dans le monde.

Un réacteur nucléaire permet de produire une réaction de fission en chaîne et d'en contrôler l'intensité. Il se compose de quatre éléments primordiaux :

- **le combustible** qui produit de l'énergie par la réaction de fission nucléaire ;
- **le fluide caloporteur**, qui extrait l'énergie produite et la transporte hors du cœur réacteur et le refroidit ;
- **le modérateur**, qui ralentit les neutrons et favorise la réaction en chaîne. En effet, le faible enrichissement du combustible en noyaux fissiles implique que les neutrons rapides issus de la fission doivent être « thermalisés ». Pour plus d'efficacité de la réaction, l'énergie des neutrons (provenant de la réaction de fission) doit être réduite de 2 MeV (domaine d'énergie dit rapide) à une énergie inférieure à 1/40 eV (domaine d'énergie dit thermalisé) ;
- **des moyens de contrôle de la réaction de fission** :
 - selon les gestions, des poisons neutroniques sont ajoutés au combustible (ex : gadolinium) ;
 - des barres de commandes constituées d'un matériau absorbant les neutrons ;
 - des corps dissous dans le caloporteur (acide borique).

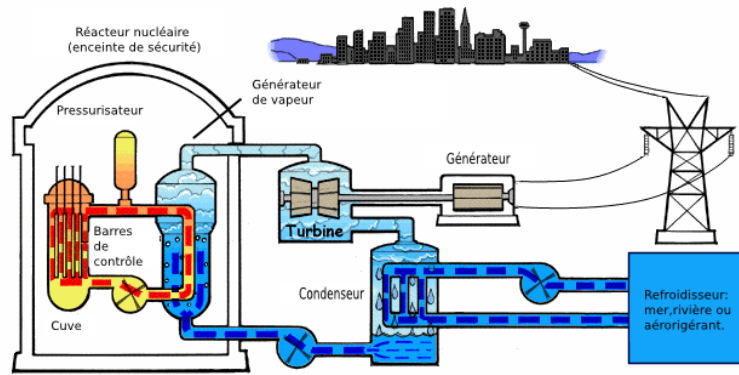


FIGURE 1.1 – Schéma du fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée

La figure 1.1 explique le fonctionnement d'un REP. Le réacteur est constitué d'un circuit d'eau appelé circuit primaire (circuit fermé en rouge sur la figure) dont l'eau, ordinaire, est pressurisée à 15,5 MPa et sert à la fois de réfrigérant caloporteur et de modérateur. En fonctionnement normal, le fluide caloporteur est injecté dans le circuit primaire à une température de 285 °C et en ressort à une température de 320 °C environ. La chaleur récupérée est évacuée par transmission au circuit secondaire au niveau d'un échangeur de chaleur (circuit fermé en bleu sur la figure 1.1). L'eau du circuit secondaire y est vaporisée dans le générateur de vapeur. Celle-ci entraîne les turbines qui produisent l'électricité. Après ce passage, la vapeur est refroidie au niveau du condenseur par le circuit tertiaire, ouvert, via un grand débit d'eau froide pompée de la mer ou d'un fleuve. Le contrôle de la réaction de fission au sein du cœur du réacteur est assuré par les moyens de contrôles cités précédemment.

Les prochains paragraphes présentent plus en détails les composants du cœur du réacteur, lieu de la réaction de fission.

1.1.2 Assemblage et crayon combustible

L'assemblage

Le cœur réacteur d'un REP est composé d'un ensemble d'assemblages combustibles dont le nombre varie de 157 à 205 selon la puissance du réacteur. Un assemblage est constitué d'un réseau à pas carré de 17 x 17, dans lequel sont introduits 264 crayons combustibles, 24 tubes guides pour les barres de commande (ou barres de contrôle) et 1 tube d'instrumentation central. La tenue mécanique des assemblages est assurée par 8 grilles de maintien, composées de zirconium (matériau peu neutrophage) et soudées aux tubes guides par l'intermédiaire de manchons. Un assemblage est représenté figure 1.2.

Les crayons sont maintenus « flottants » dans l'eau, dans chaque alvéole entre deux bossettes et un ressort en Inconel. Des languettes inclinées, appelées ailettes de mélange, garantissent une bonne homogénéisation du débit du fluide réfrigérant traversant le faisceau de crayons du bas vers le haut à une vitesse moyenne de 4.8 m/s, entrant à une température de 285 °C pour en sortir à une température de 320 °C. La plaque de pied de l'assemblage permet son maintien et son positionnement lors des opérations de chargement par encastrement sur des têtes aménagés sur la plaque inférieure du cœur. La plaque de tête est munie de ressorts qui s'opposent à la force ascensionnelle du réfrigérant en prenant appui sur la plaque supérieure du cœur. Des lumières sont installées pour permettre le passage des grappes de commande du réacteur et du réfrigérant.

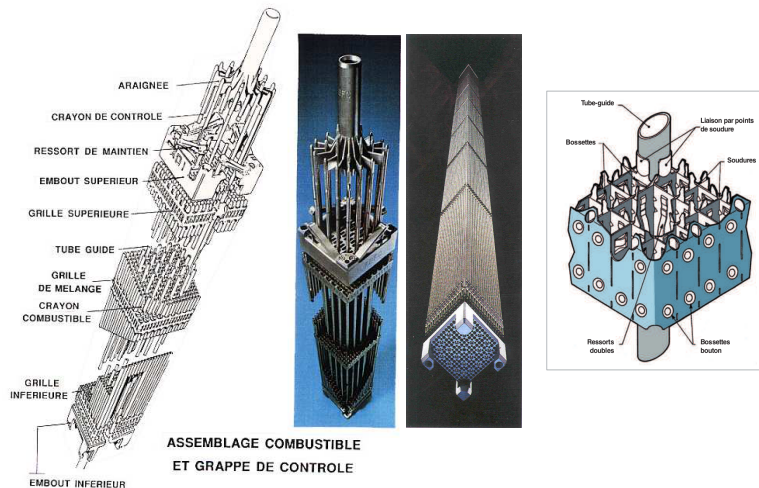


FIGURE 1.2 – Un assemblage combustible REP. Schéma, vue de dessus et de dessous [BB02]

Le crayon combustible UO_2 dans un REP 900 MWe

Un crayon combustible, représenté figure 1.3 est un ensemble composé :

- d'un **tube de gainage** en alliage de zirconium (matériau choisi pour son bon comportement mécanique, chimique et sa bonne perméabilité neutronique). Sa longueur est d'environ 4 m pour un diamètre de 9.50 mm et une épaisseur de 0,57 mm.
- d'un **empilement de pastilles** combustible. Chaque crayon en compte environ 265 pour une longueur totale d'environ 3,60 m. Cet empilement est usuellement appelé colonne combustible.
- d'une **chambre d'expansion**. Cette partie laissée vide est nécessaire pour l'accommodation des gaz de fission et permettre le gonflement axial de la colonne combustible lié aux produits de fission issus de l'irradiation.
- d'un **ressort** en inconel, qui permet le maintien de la colonne combustible pendant le transport de l'usine vers la centrale. Ce ressort permet de maintenir les pastilles au contact, pour ne pas avoir d'espace interpastille qui serait propice au flambage de la gaine lors de l'irradiation.
- de deux **bouchons d'extrémité** soudés qui sont composés d'un alliage de zirconium. Ils garantissent l'étanchéité et l'intégrité du crayon.

Le crayon est pressurisé entre 1.5 et 3 MPa avec de l'hélium additionné de 0.1 MPa d'air. Cette pression de remplissage est optimisée pour contrebalancer à la fois :

- la pression extérieure du réfrigérant en début de vie ;
- la trop forte augmentation de la pression interne du crayon au cours de l'irradiation. En effet, sous irradiation, des gaz de fission sont produits au sein du combustible et relâchés dans les volumes libres du crayon.

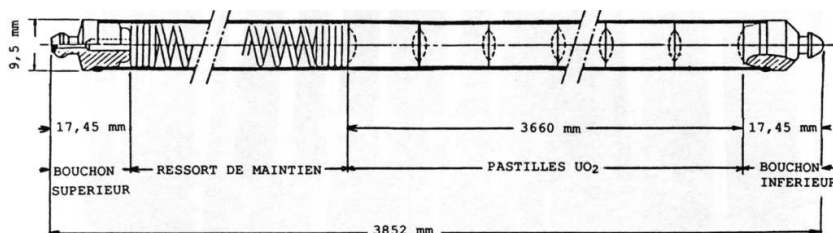


FIGURE 1.3 – Représentation d'un crayon combustible utilisé dans un REP 900 MWe. [BB02]

La pastille UO_2

Le combustible des centrales REP est usiné sous la forme de pastilles, empilées dans les crayons. Elles se présentent sous la forme d'un cylindre de l'ordre de 8,2 mm de diamètre et d'une hauteur d'environ 13,5 mm qui possède un évidement hémisphérique à ses extrémités, destiné à accommoder les déformations de la pastille lors de l'irradiation. La pastille est également chanfreinée pour faciliter l'introduction dans le tube de gainage. La figure 1.4 montre la pastille combustible et ses dimensions.

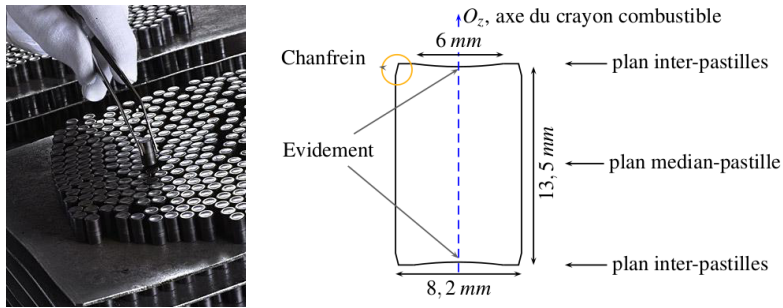


FIGURE 1.4 – Pastille UO_2 combustible et ses dimensions caractéristiques utilisées en REP.

Les pastilles sont obtenues par pressage et frittage de poudre de dioxyde d'uranium (UO_2), enrichi à hauteur de 3 à 5 % en noyau fissile de ^{235}U suivant les gestions considérée. Au cours du processus de fabrication, des agents porogènes sont ajoutés à la poudre. Après fabrication, la pastille combustible est hétérogène à petite échelle : elle possède une densité théorique de 95,5% soit 4 à 5 % de porosité initiale appelée « porosité de fabrication ». Dans le cas de l' UO_2 , le matériau obtenu est cristallisé en grains polyhédriques de diamètre compris entre 5 et 12 μm dans le cas de l' UO_2 . Les porosités de fabrication ont un diamètre compris entre le nanomètre et 50 μm . Elles peuvent être intragranulaires, situées dans le grain, ou intergranulaires, situées aux joints de grains. La figure 1.5 montre la microstructure polycristalline de l' UO_2 après fabrication.

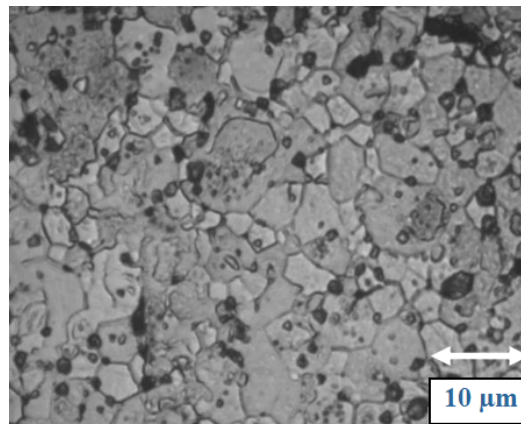


FIGURE 1.5 – Vue au MEB de la surface d'un échantillon d' UO_2 laissant apparaître les grains polyhédriques. Les parties noires sont les porosités de fabrication et les bulles situées dans les grains (intragranulaires) ou aux joints de grains (intergranulaires).

1.1.3 Description succincte de l'évolution du crayon combustible sous irradiation en fonctionnement normal

Cette partie est consacrée au comportement sous irradiation de la pastille combustible en fonctionnement normal et ses incidences sur le crayon combustible. Nous rappelons les principaux phénomènes se produisant au cours de l'irradiation et renvoyons à la référence [BMP96] pour plus de détails.

A la mise en température et en pression du réacteur, lors de la première montée en puissance, la pastille combustible UO_2 se fracture en 6 ou 8 fragments radiaux. Nous pouvons expliquer cette fracturation en modélisant la pastille par un cylindre infini (approche cohérente avec la représentation géométrique de la structure : longueur axiale de la colonne combustible égale à 3,66 m tandis que le diamètre d'une pastille est égal à 8,2 mm) et en cherchant dans le premier temps à évaluer le champ de température radial au sein de cette pastille. Pour cela nous posons k la conductivité thermique de la pastille. En écrivant la loi de Fourier, le profil de température T , en régime stationnaire, est donné par la relation suivante :

$$T(r) = T_{coeur} - \frac{P_{lin}}{4\pi k} \left(\frac{r}{R}\right)^2; \quad (1.1)$$

avec R le rayon de la pastille, r distance à l'axe axial de symétrie du crayon, P_{lin} puissance linéique. Si on prend $k = 3.10^{-2} W.cm^{-1}.K^{-1}$, la différence de température entre le cœur de la pastille et sa périphérie est de plus de $500^\circ C$, soit un gradient thermique supérieur à $120^\circ C.mm^{-1}$ pour une puissance de fonctionnement nominal. La figure 1.6 représente le profil radial de la température dans la pastille en fonctionnement nominal ($P_{lin} = 200 W.cm^{-1}$).

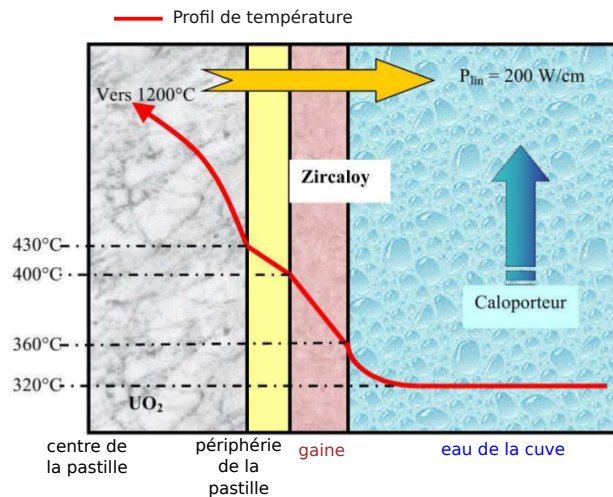


FIGURE 1.6 – Profil radial de température dans la pastille combustible.

Le centre de la pastille étant à une température plus élevée que la périphérie, il se dilate davantage. Ce différentiel de dilatation thermique génère d'importantes contraintes dans la pastille. Une analyse

thermoélastique simplifiée¹ permet d'obtenir le champ des contraintes principales suivant :

$$\begin{cases} \sigma_{rr}(r) = \frac{E\alpha\Delta T}{4(1-\nu)} \left[\left(\frac{r}{R}\right)^2 - 1 \right] \\ \sigma_{\theta\theta}(r) = \frac{E\alpha\Delta T}{4(1-\nu)} \left[3\left(\frac{r}{R}\right)^2 - 1 \right] \\ \sigma_{zz}(r) = \frac{E\alpha\Delta T}{4(1-\nu)} \left[4\left(\frac{r}{R}\right)^2 - 2 \right] \end{cases} \quad (1.2)$$

avec :

- ΔT la différence de température entre le centre de la pastille et sa périphérie donnée par l'équation (1.1);
- E le module d'Young;
- ν le coefficient de Poisson;
- α le coefficient de la dilatation thermique;

Le centre de la pastille est sollicité en compression tandis que la périphérie est en traction. La contrainte radiale est toujours en compression et nulle en périphérie (la pastille y étant libre de se dilater jusqu'à la fermeture du jeu entre la pastille et la gaine). Aux températures où la pastille est sollicitée, celle-ci a un comportement fragile. Une fissuration apparaît dès que les contraintes atteignent la résistance à la rupture. Cette contrainte à rupture en flexion est estimée à environ 130 MPa par le CEA [BMP96], ce qui signifie que la pastille est susceptible de se fissurer lorsque la différence de température entre la surface et le centre de la pastille dépasse 110 °C. Cette condition est largement atteinte dès le début de la première montée en puissance du réacteur. Un exemple de réseau de fissures est représenté sur la figure 1.7.



FIGURE 1.7 – Céramographie d'une pastille REP fissurée par le gradient thermique, après un cycle d'irradiation - plan transversal de la pastille.

Le jeu initial entre la gaine et le combustible autorise le déplacement des différents fragments. Dès lors, il y a une augmentation du diamètre apparent de la pastille. D'autre part, sous l'effet du fort gradient thermique, par dilatation thermique différentielle, la pastille se déforme en « diabolo » (voir figure 1.8). Cela se traduit par un sur-déplacement des points situés au plan inter-pastille par rapport aux points situés au plan médian-pastille.

1. Pour réaliser ce calcul, on considère que la pastille est un cylindre infini. On se place alors en déformations planes généralisées ($\varepsilon_{zz} = \text{cst}$), on suppose une invariance par translations ($\frac{\partial u_r}{\partial z} = \frac{\partial u_\theta}{\partial z} = 0$) et une symétrie de révolution ($\varepsilon_{rr} = \frac{\partial u_r}{\partial r}$ et $\varepsilon_{\theta\theta} = \frac{u_r(r)}{r}$). On suppose également que la pastille est libre sur le bord extérieur (il n'y a pas de contact entre la pastille et la gaine) et le comportement est élastique isotrope

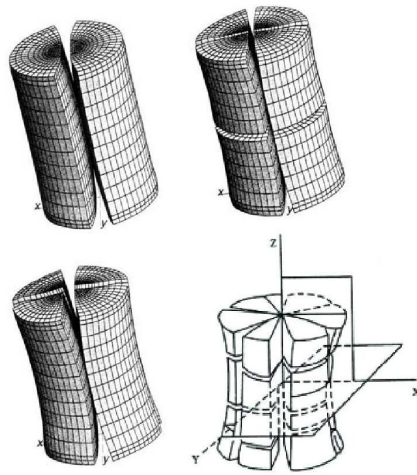


FIGURE 1.8 – Déformations thermiques et mise en diabolo de la pastille [BMP96],[Dia01].

De plus, au cours de l'irradiation, la gaine flue vers la pastille sous l'action de la pression différentielle entre le caloporteur (pression = 15,5 MPa) et les gaz contenus dans le crayon (pression d'environ 6 MPa à chaud et qui va augmenter en fonction du relâchement des gaz de fission de la pastille). La pastille, quant à elle, après avoir densifié (disparition d'une partie de la porosité de fabrication sous l'effet des pointes de fission), gonfle sous l'effet de l'irradiation, son diamètre augmente d'environ 0,07 % par 10 GWj/tM (taux de combustion)². Le jeu entre pastille et gaine diminue donc pour conduire après environ 10 000 heures de fonctionnement, généralement au début du deuxième cycle d'irradiation, à un contact entre pastille et gaine. Il s'opère alors un réarrangement des fragments céramiques vers l'intérieur du crayon. Du fait de la mise en « diabolo » de la pastille le contact entre la pastille et la gaine s'opère en premier au droit des plans inter-pastilles. Ce phénomène augmente très nettement les contraintes subies par la gaine et fait apparaître un réseau de points anguleux. Il se forme alors sur la gaine, au niveau des interfaces, des plis dit « primaires ». Ce contact finit par s'établir à tous les niveaux entre la pastille et la gaine (voir figure 1.9).

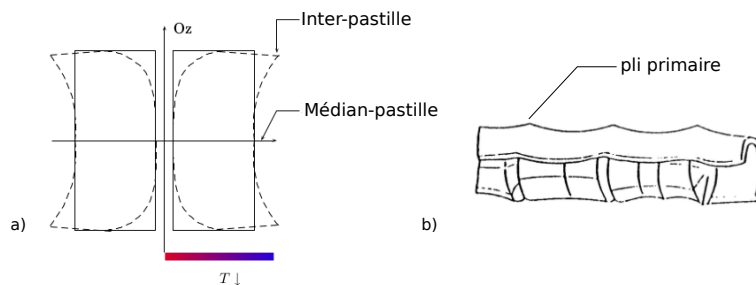


FIGURE 1.9 – Représentation schématique du contact pastille gaine. a) A gauche, une coupe longitudinale (Rz). b) A droite, une coupe transversale (Rθ).

Par la suite et au cours de l'irradiation, le gonflement du combustible impose les sollicitations à la gaine, engendrant des contraintes de traction tangentielle dans le tube de gainage. Ces contraintes

2. Il s'agit d'une unité typique dans le domaine du nucléaire qui traduit l'épuisement. Nous entendons par épuisement le cumul dans le temps du nombre de relatif de noyaux disparus par fissions. L'unité peut être alors le pourcentage de noyaux initiaux. Mais nous utilisons plus couramment la notion de taux de combustion représentant l'intégrale dans le temps de la puissance générée par unité de masse d'atomes métalliques : il s'exprime en GWj/tM (Gigawatt jour par tonne d'Uranium pour l' UO_2).

augmentent jusqu'à atteindre un équilibre vis-à-vis des pressions externes du caloporteur. Le crayon est alors dit « conditionné » à ce niveau de puissance, ce qui correspond, en régime de fonctionnement de base, à une puissance linéique d'environ $P_{lin} = 200 \text{ W.cm}^{-1}$. D'autres phénomènes apparaissent également en fonctionnement normal et notamment à fort taux de combustion : le combustible UO_2 perd sa structure granulaire polyédrique en périphérie de pastille. Dans cette zone, la teneur en plutonium fissile est élevée du fait du phénomène d'autoprotection³. Du coup, le taux de combustion est aussi très élevé ce qui perturbe fortement la microstructure du combustible. L'énergie interne conduit à une restructuration du combustible, c'est la formation de la zone HBS. La zone HBS étant au cœur de ce travail de thèse, les mécanismes et le comportement de cette zone seront abordés plus en détails dans la partie 1.2 et ce en conditions normales (cf partie 1.2.1).

1.1.4 Description succincte de l'évolution du crayon combustible en condition accidentelle APRP

Cette partie s'attache à la description du scénario d'un APRP et de ses conséquences sur le crayon combustible. Une description complète de l'accident est disponible dans les références [LA-01],[OEC09].

Le risque d'occurrence d'un APRP est évalué à 10^{-4} par an et par réacteur. Dans le cas du REP, l'APRP est généralement la conséquence de la rupture au niveau du circuit primaire, de la conduite en double guillotine entre la cuve du réacteur et la pompe du refroidisseur (lieu d'échanges thermiques). L'apparition de la fuite dans le système primaire entraîne une perte de pression (d'une durée de 0 à 30 secondes) dans le circuit.

Plusieurs dimensions de brèches sont prises en compte dans les référentiels de sûreté : petite brèche, brèche intermédiaire et grosse brèche suivant le débattement des deux parties de la conduite endommagée du circuit primaire. La limite entre ces trois catégories dépend du modèle de réacteurs étudié et des normes en vigueur dans le pays concerné. Dans le cas d'un réacteur REP français, les études pour les référentiels de sûreté sont divisées en trois catégories :

- **Petite brèche.** Une brèche inférieure à 3/8 de pouces (environ 7,5 cm) en diamètre est considérée comme petite. Cette rupture est suffisante pour provoquer une chute de pression dans le circuit primaire. Cependant, il n'y a pas de dénoyage du cœur : la perte du débit de refroidissement est compensée par l'action des injecteurs de secours, qui stockent une quantité d'eau suffisante pour palier le manque dans la cuve.
- **Brèche Intermédiaire (BI).** Une brèche mesurant jusqu'à 13,5 pouces (environ 34 cm) est considérée comme intermédiaire.
- **Grosse brèche.** Une grosse brèche est définie comme étant supérieure à 13,5 pouces. Cependant, la présence des anneaux anti-débattement le long du circuit primaire permet aujourd'hui d'écarter la possibilité d'accidents APRP grosse brèche, et garantissent la continuité d'un débit d'eau pour refroidir le cœur du réacteur : il s'agit alors de conditions similaires au cas d'une brèche intermédiaire [Boi13].

Sur le plan thermohydraulique, suite à l'instant initial de l'accident constitué par la perte de réfrigérant, un tel transitoire accidentel se déroule en quatre phases schématisées sur la figure 1.10 (les fissions ont été arrêtées dès le début de l'évènement par la chute des barres, seule reste la puissance résiduelle du combustible).

3. le phénomène de capture radiative de l' $^{238}_{92}\text{U}$ a une probabilité plus élevée en périphérie de pastille qu'au centre, ce qui crée un effet d'autoprotection

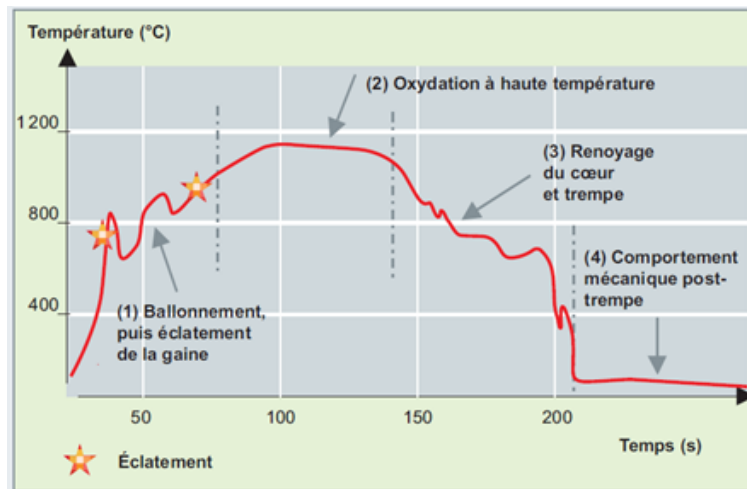


FIGURE 1.10 – Évolution de la température en peau externe de gaine au cours du temps lors d'un transitoire thermique APRP [Lev13].

1. La première phase est une phase de chauffage de la gaine et du combustible sous l'effet de sa puissance résiduelle (10 à 20W/cm). Le gradient radial initial de température, existant dans le crayon combustible à la fin du fonctionnement en puissance, laisse rapidement place à une distribution quasi-isotherme. Le chauffage a lieu dans une ambiance de vapeur d'eau avec une cinétique de 10 à 20°C/s. Ces conditions provoquent une oxydation externe de la gaine avec la formation d'un ballonnement local de celle-ci sous l'effet de la pression interne qui peut aller jusqu'à la perte d'étanchéité (voir figure 1.11). Dans ce cas, une partie de l'inventaire des produits radioactifs disponibles dans le crayon (jeu combustible-gaine, porosités ouvertes et contenu des joints de grains endommagés du combustible) est relâché dans le circuit primaire. Il s'agit essentiellement des isotopes des gaz rares xénon et krypton : des études spécifiques ont été conduites au CEA pour déterminer les quantités de gaz de fission susceptibles d'être relâchées par le combustible dans ces situations particulières [PFPP04] ;
2. un équilibre à haute température (entre 900 et 1200 °C selon les crayons) est ensuite atteint et dure plusieurs dizaines de secondes. Cette température d'équilibre peut être modifiée s'il s'est produit, au moment du ballonnement, une re-localisation axiale du combustible consécutive à une fragmentation de celui-ci : on peut avoir alors localement une puissance résiduelle supérieure à la valeur moyenne ;
3. une phase de refroidissement brusque des crayons (et notamment de la gaine, pouvant s'apparenter à une « trempe ») intervient lors du renoyage du cœur par les systèmes de refroidissement de secours. En cas de rupture de la gaine, la remise en eau entraîne un « lessivage » des volumes libres internes des crayons non étanches et peut provoquer un relâchement supplémentaire de produits de fission radioactifs : gaz rares, mais aussi isotopes volatiles (par exemple iode, tellure et césium), voire non volatils (comme les produits de fissions métallique). Les capacités de refroidissement du cœur dépendent toutefois de l'ouverture en cas de ballonnement excessif des gaines (voir figure 1.11). Ce point conditionne fortement le scénario de sortie de la séquence accidentelle ;
4. une dernière phase post-accidentelle, dans laquelle, selon les critères de sûreté, les éléments de combustibles doivent pouvoir être refroidis et manutentionnés.

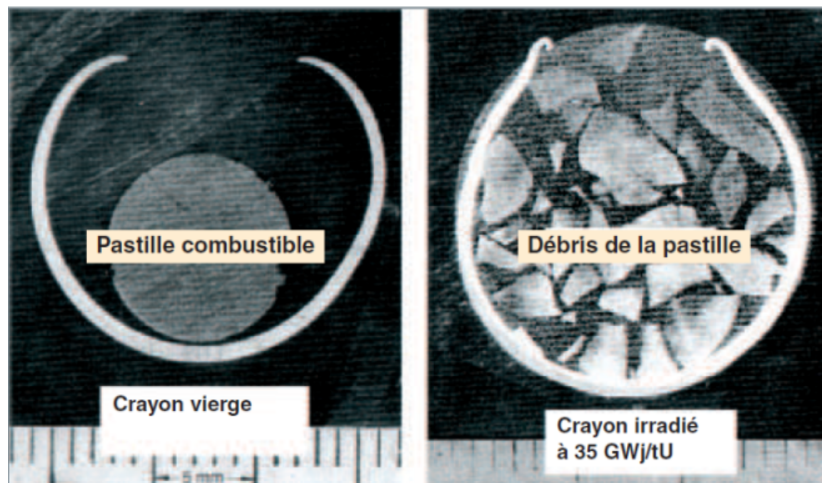


FIGURE 1.11 – Aspect de crayons expérimentaux vus en coupe suite à une séquence APRP (essais allemands FR2) [PB08]

Dans cette thèse, nous nous focalisons sur l'étape 1 de l'accident. Cette étape a deux conséquences industrielles majeures sur le crayon :

- **Côté gaine**, l'action cumulée de la montée de la température, du relâchement des gaz de fission dans les volumes libres du crayon, provoque une élévation de la pression interne dans le crayon. De plus, le dénoyage du cœur ne permet plus d'appliquer une pression (caloporteur pressurisé à 155 bar) sur la gaine, qui n'est plus contrainte en extérieur. Ces conditions peuvent entraîner « le ballonnement » de la gaine. Il s'agit d'une déformation importante de la gaine pouvant aller jusqu'à plus de 35 % de sa dimension initiale. Ce phénomène peut mener à l'éventuelle rupture de gaine par ballonnement-éclatement au cours de la montée en température (un exemple est visible à gauche de la figure 1.12). Par ailleurs, le gonflement de la gaine peut encombrer le canal de refroidissement et diminuer le débit d'eau qui circule autour des crayons et la capacité de refroidissement (aujourd'hui dans les REP, il a été démontré que malgré une obstruction du canal de refroidissement de 70 %, le refroidissement des crayons était toujours réalisé).
- **Côté pastille**, les transitoires thermiques réalisés en laboratoire ou en réacteur expérimental sur des crayons tests montrent qu'il existe une éventuelle surfragmentation du combustible dépendante du taux de combustion et de la température. Cette surfragmentation a lieu dans les zones radiales de la pastille où il y a des bulles de gaz de fission (xénon et krypton) [LOC15]. L'hypothèse avancée aujourd'hui est la suivante : les bulles de gaz de fission, notamment les bulles inter-granulaires, montent en pression lors du transitoire thermique et conduisent à un endommagement et une décohésion des Joints De Grains (JDG) lorsque la contrainte de rupture de ceux-ci est atteinte. Dès lors les gaz de fission contenus dans ces bulles finissent par être relâchés dans les volumes libres du crayon si l'endommagement initié aux JDG conduit à des fissures débouchantes. Cette fragmentation aboutie à des fragments de petite taille. Ce phénomène est appelé « surfragmentation » car les fragments déjà observés en condition de fonctionnement normal, se rompent une nouvelle fois. Le combustible est alors constitué de fragments de taille millimétrique à micrométrique (la figure 1.12 montre les fragments après un essai de transitoire APRP). La fragmentation est dite fine quand les fragments sont de taille inférieure à 1 mm.

L'existence de ces fragments pose de nouvelles problématiques. En effet, en cas de rupture de gaine, il existe un risque de dispersion de ces fragments hors du crayon lors de la dépressurisation du crayon. En cas de non rupture de gaine, les fragments peuvent également se relocaliser au droit du ballon, conduisant dès lors à une surpuissance locale, et de surcroît à une amplification possible de la taille du ballon. Les essais semi-intégraux réalisés [Rep10],[Top13], [21613] ont notamment montré que

l'expulsion de particules de combustible chaud ou fondu dans le fluide primaire peut provoquer des interactions thermiques violentes. Ce phénomène entrainerait un dégagement supplémentaire d'énergie par interaction entre les particules de combustible et l'eau, d'où l'apparition de poches de vapeur dégradant le refroidissement des crayons voisins et la génération d'ondes de pression potentiellement nocives. De plus, au cours du transitoire thermique le relâchement des gaz de fission dans les volumes libres du crayon pose également des problèmes. En effet, l'augmentation de la pression interne des crayons peut conduire à une amplification de la taille du ballon et donc à une rupture de gaine. En cas de rupture de gaine, ces gaz seront relâchés dans le circuit primaire. Cette quantité de gaz relâchée doit être évaluée correctement afin de quantifier précisément la contamination radiologique du circuit primaire.

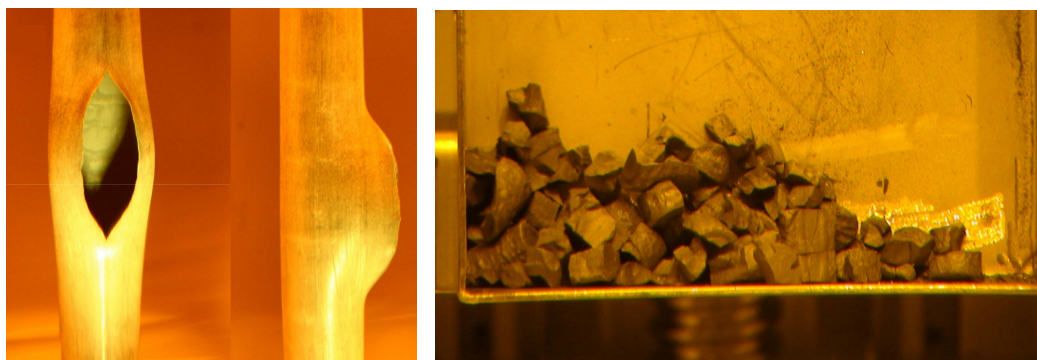


FIGURE 1.12 – Deux conséquences industrielles majeures d'un transitoire APRP : à gauche le ballonnement-éclatement de la gaine. A droite, la surfragmentation du combustible UO_2 - examen après vidange d'un crayon d'un essai réalisé à Studsvik.

L'ensemble de ces conséquences sur le crayon combustible démontre qu'il est important de prédire correctement la surfragmentation du combustible UO_2 lors d'un transitoire thermique de type APRP. Comme nous l'avons déjà dit, cette surfragmentation intervient dans les zones radiales de la pastille où le nombre de bulles est important, à fort taux de combustion et à partir d'un certain niveau de température. A fort taux de combustion et en périphérie de pastille, nous avons vu précédemment et succinctement (cf partie 1.1.3) qu'apparaisait en fonctionnement normal une microstructure nommée HBS : microstructure contenant des grains submicroniques et une forte fraction volumique de bulles inter-granulaires. Cette zone va donc être propice à la surfragmentation lors d'un transitoire thermique de type APRP. De part sa position en périphérie de pastilles, les fragments de la zone HBS sont les plus susceptibles d'être relocalisés en cas de non rupture de gaine ou être éjectés en cas de rupture. Pour ces raisons, nos travaux se focalisent sur le comportement mécanique de cette zone HBS en condition d'APRP. Avant d'effectuer cette analyse dans la partie 1.2.2, il est primordial de rappeler dans la partie 1.2.1 les mécanismes qui ont conduit à la formation de cette zone en condition de fonctionnement normal.

1.2 Description détaillée des phénomènes subis par le combustible UO_2 en zone périphérique, à fort taux de combustion et en conditions normales et accidentelles.

La formation des structures à haut taux de combustion (HBS) représente un des phénomènes les plus significatifs, en terme de modification microstructurale, ayant lieu dans le combustible lors de l'irradiation. Cette transformation se produit quand le taux de combustion local de la pastille dé-

passé environ 60 GWj/tM. La section suivante est entièrement dédiée à la description des principales caractéristiques de cette microstructure ainsi que les conséquences de la restructuration HBS sur le comportement du combustible.

1.2.1 Zone HBS du combustible UO_2 irradié à fort taux de combustion en fonctionnement normal : présentation des mécanismes de formation et de la microstructure associée

La restructuration HBS se caractérise principalement par une subdivision des grains originaux du combustible et par l'apparition de bulles de gaz de fission pressurisées dans le combustible à fort taux d'irradiation (voir figure 1.13). Elle a été identifiée pour la première fois pour des crayons à forts taux de combustion en 1967 dans les Réacteurs à Eau Légère (REL) et en 1985 dans les crayons REP d'EDF du réacteur de Fessenheim [BB02]. Elle apparaît en périphérie de pastille où le taux de combustion local est le plus fort. Depuis les années 1980, de nombreuses observations expérimentales se sont accumulées, visant à mieux caractériser ces microstructures fort taux. Cependant sa formation est le résultat de phénomènes complexes qui sont encore discutés aujourd'hui. Ses principales caractéristiques sont listées ci-après.

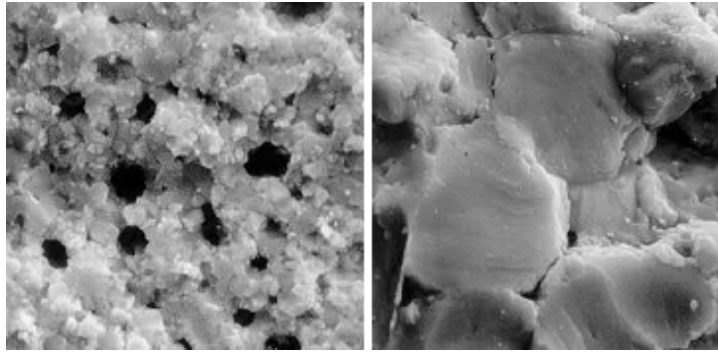


FIGURE 1.13 – Comparaison des microstructures de l' UO_2 . A gauche, le combustible restructuré HBS avec présence de bulles HBS en noir aux JDG, en comparaison à droite au matériau original non restructuré.

Taux de combustion local : le taux de combustion dans la pastille varie en fonction de la position radiale considérée. En périphérie de pastille, la capture de neutron épithermique par l' U^{235} s'ajoute aux réactions de fission d'irradiation. Ce phénomène provoque la formation de Pu^{239} [SVC96] qui a pour effet d'augmenter le taux de combustion local, d'environ 3 % massique par rapport au centre de la pastille, entraînant rapidement un creusement radial de la densité de fission et de la puissance. Le taux de combustion local en périphérie peut atteindre près de deux fois la valeur au centre pastille (pour un taux de combustion moyen pastille de 60 GWj/tM avec des enrichissements en U^{235} entre 3 à 4,5 %). La figure 1.14 donne les profils radiaux de concentration en Pu et Nd (néodyme). Le néodyme est considéré usuellement comme un produit de fission traceur du taux de combustion. L'augmentation de la concentration des deux espèces est distincte entre 0 et 0,2 mm en périphérie de pastille. La restructuration intervient quand le taux de combustion local atteint 60 GWj/tM.

Le développement de la zone HBS est également dépendant des conditions d'irradiation de base, notamment de la température. En effet, pour des températures élevées, soient supérieures à 1100 °C (+/- 100°), la restructuration est absente. L'hypothèse expliquant ce phénomène serait, qu'à cette température, les défauts ponctuels et les dislocations sont recuits : le combustible ne peut se restructurer [SKR⁺02]. La figure 1.15 montre l'évolution de la microstructure de l' UO_2 selon le taux de combustion et la température.

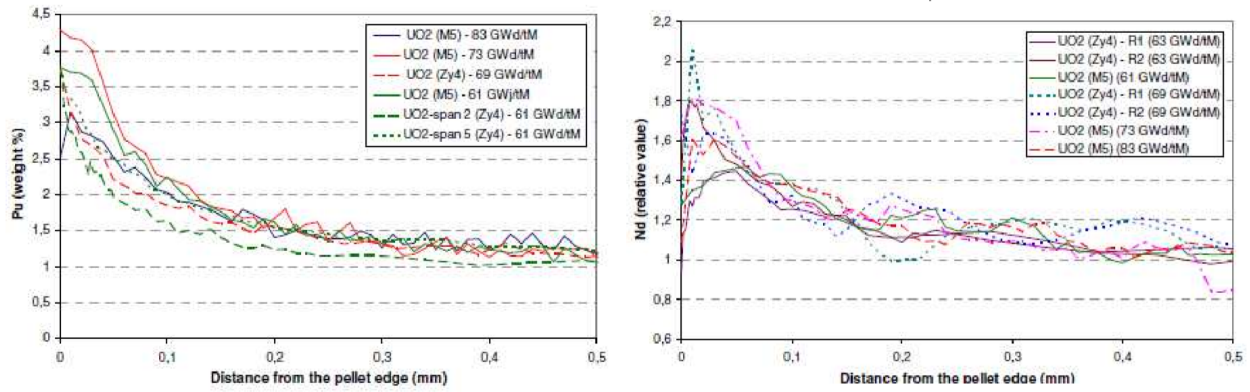


FIGURE 1.14 – Évolution de la concentration en Pu et Nd en fonction de la position radiale dans la pastille pour différents combustible UO_2 [LBM10]

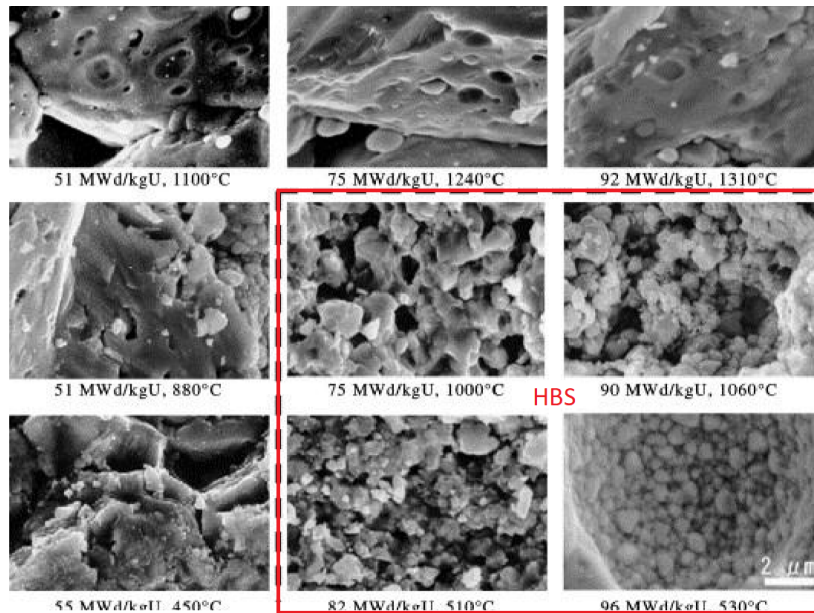


FIGURE 1.15 – Evolution de la structure du combustible suivant son taux de combustion et sa température. Apparition d’une restructuration HBS (cadre rouge).[SKR⁺02]

Épaisseur de la zone HBS en périphérie de pastille : la proportion de la zone HBS augmente au cours de l’irradiation avec le taux de combustion. D’autres paramètres comme la présence d’éléments chimiques (Pu, Gd,...), la température ou le matériau de gainage peuvent affecter son développement. La figure 1.16 donne à titre d’exemple l’épaisseur de combustible restructuré HBS mesurée sur différents combustibles UO_2 . La zone HBS se développe progressivement de l’extérieur vers le centre de la pastille. En fonctionnement normal et pour les gestions actuelles du combustible UO_2 , cette couche aussi appelée RIM (traduction de « bordure » en anglais), ne dépasse pas les 100 à 200 μm en périphérie de pastille. Une transformation complète de la zone HBS n’est visible qu’à la fin du troisième cycle voire au début du quatrième cycle d’irradiation, soit pour un taux de combustion d’environ 60 GWj/tM moyen pastille soit environ 100 GWj/tM local.

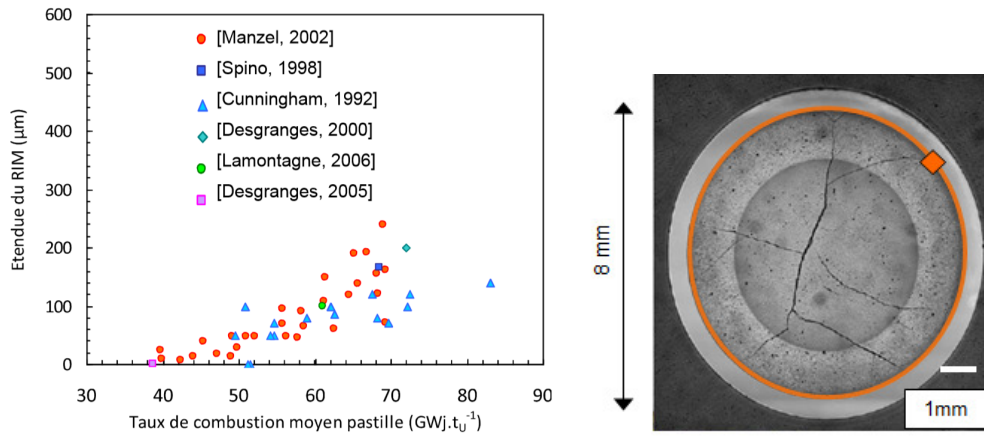


FIGURE 1.16 – Mesures de l'épaisseur de la zone restructurée HBS en périphérie de pastille pour le combustible UO_2 lors de différentes conditions d'irradiation [Del13].

Évolution de la porosité : l'augmentation de la porosité dans la zone HBS est l'une des principales caractéristiques de la restructuration. Elle influence le comportement thermique et mécanique du combustible et joue un rôle en condition accidentelle, à cause de la pressurisation des bulles de gaz de fission formées. D'après les études réalisées sur combustible UO_2 irradié à environ 110 GWj/tM, trois classes de taille de porosités sont présentes dans les zones restructurées HBS [BKTL03], [NDL08] : petites $1 \mu m$, intermédiaires entre $3-4 \mu m$ et $7-8 \mu m$ et grandes allant jusqu'à $15 \mu m$ (uniquement en extrême périphérie). Les porosités peuvent être réparties en deux catégories selon leur origines et dimensions :

- **La porosité de fabrication :** les pores initiaux de grandes tailles (supérieurs à $3 \mu m$) issus de la fabrication disparaissent durant la restructuration HBS. La figure 1.17 a) montre l'évolution des porosités selon leur taille (supérieure ou inférieure à $3 \mu m$) en fonction de la position radiale de la pastille. Entre 0 et environ $50 \mu m$ au bord de la pastille, la proportion de porosité de fabrication est quasi absente dans la zone restructurée. Il peut cependant demeurer quelques pores de grandes dimensions comme sur la figure 1.17 b) [NDL08].

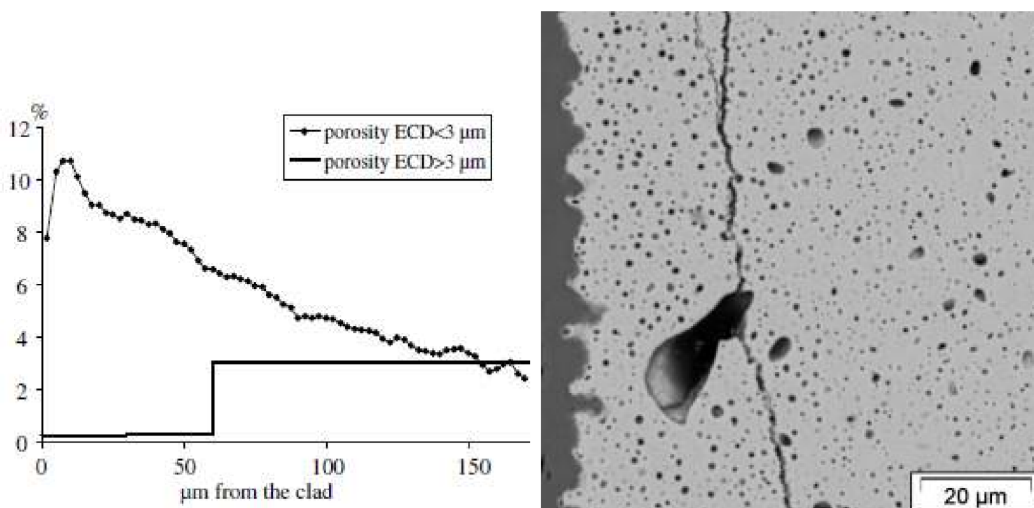


FIGURE 1.17 – a) A gauche, évolution de la porosité en fonction de la position radiale dans la pastille. b) A droite, image MEB d'un pore de fabrication observé dans la zone HBS pour un combustible UO_2 irradié à 62 GWj/tM [NDL08].

— **Les porosités HBS** : les porosités inférieures à $3\ \mu\text{m}$ augmentent rapidement en périphérie avec le taux de combustion. La figure 1.18 montre l'évolution du taux de porosités selon plusieurs taux de combustion en fonction de la position radiale dans la pastille. Pour $r/R_0 = 0.9$ (avec r position radiale considérée et R_0 rayon de la pastille), la porosité peut atteindre 15% [NDL08] en extrême périphérie et devenir plus importante avec l'irradiation.

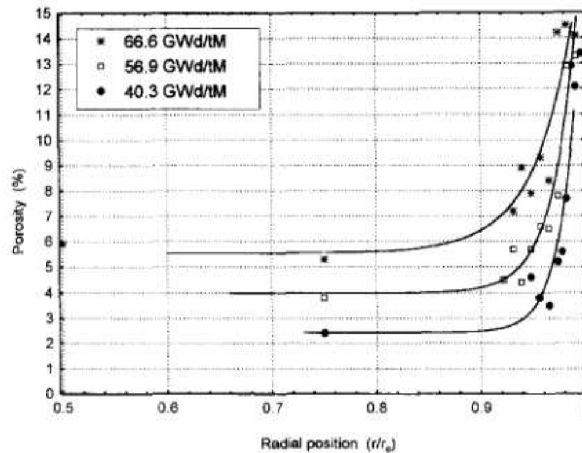


FIGURE 1.18 – Porosité en fonction de la position radiale, pour des combustibles UO₂ à différents taux de combustion [SVC96].

L'apparition de la porosité se fait rapidement lors de la restructuration avec une augmentation de la densité des bulles entre 60 GWj/tM et 100 GWj/tM. La figure 1.19 a) montre l'évolution de la densité de bulles en fonction du taux de combustion local [SVC96], qui augmente jusqu'à la restructuration complète de la zone HBS vers 100 GWj/tM. Après cette valeur, la densité des pores HBS diminue. Cette diminution est accompagnée par une augmentation de leur taille qui résulte d'un phénomène de coalescence, soit un regroupement des plus petites bulles entre elles. Ce processus induit donc une diminution du nombre de bulles qui en forment de plus grandes. Le rayon moyen des bulles est compris entre 0,5 et 1 μm dans l'UO₂, comme illustré sur la figure 1.19 b).

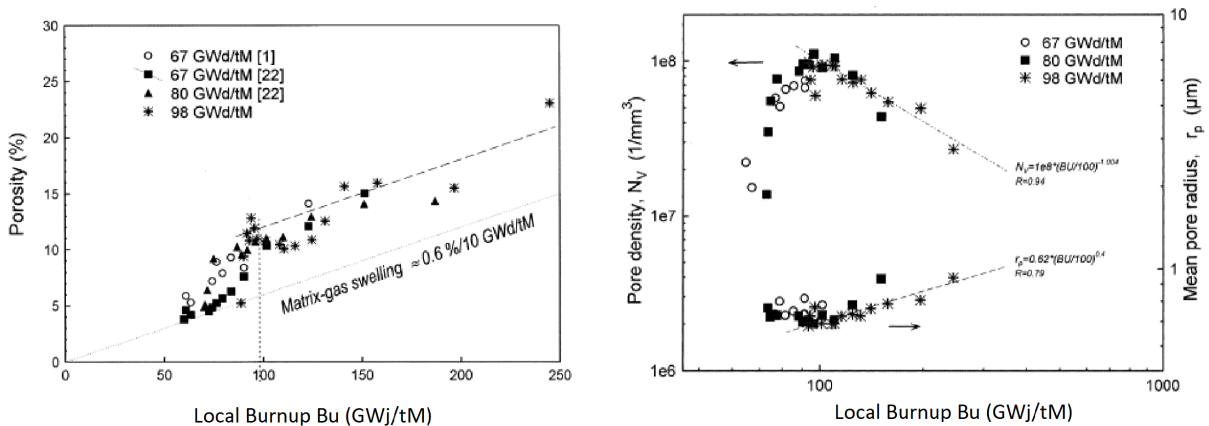


FIGURE 1.19 – a) en haut, augmentation de la porosité dans la zone de restructuration. b) en bas, densité et rayon moyen des pores en fonction du taux de combustion local pour un combustible UO₂ [SVC96].

Contenu des pores HBS : les bulles HBS sont alimentées par les gaz de fission créés au cours de la réaction de fission. Deux méthodes expérimentales peuvent être utilisées pour déterminer leur contenu :

1. Les examens par microsonde (EPMA Electron Probe MicroAnalysis ou microsonde électronique) mettent en évidence la restructuration HBS via la perte de détection du Xe, qui était contenu principalement dans des bulles HBS percées au polissage. Ce résultat est illustré par la figure 1.20 a) qui montre une perte de détection du Xe à partir d'un taux de combustion correspondant au début de la restructuration HBS.
2. Le SIMS (Secondary Ions Mass Spectrometry) permet de connaître la quantité de gaz dans le combustible. Il détecte la quantité de gaz dans les bulles HBS mais aussi dans les nanobulles et le gaz dissous dans la matrice. La préparation n'influence pas les résultats. La figure 1.20 b) montre la réalisation d'une mesure SIMS en fonction de la position radiale de la pastille. En périphérie, il est relevé une augmentation de la quantité de Xe totale contenue dans le combustible. Ce résultat montre que la majorité des produits de fission gazeux de la zone HBS sont contenus dans les bulles fermées et pressurisées. De plus, la comparaison des mesures avec les points d'estimation de la quantité de Xe créée par irradiation permet de constater que l'essentiel du gaz généré dans la zone HBS reste dans la pastille : en condition de fonctionnement normal, aucun relâchement significatif n'est observé pour cette zone restructurée.

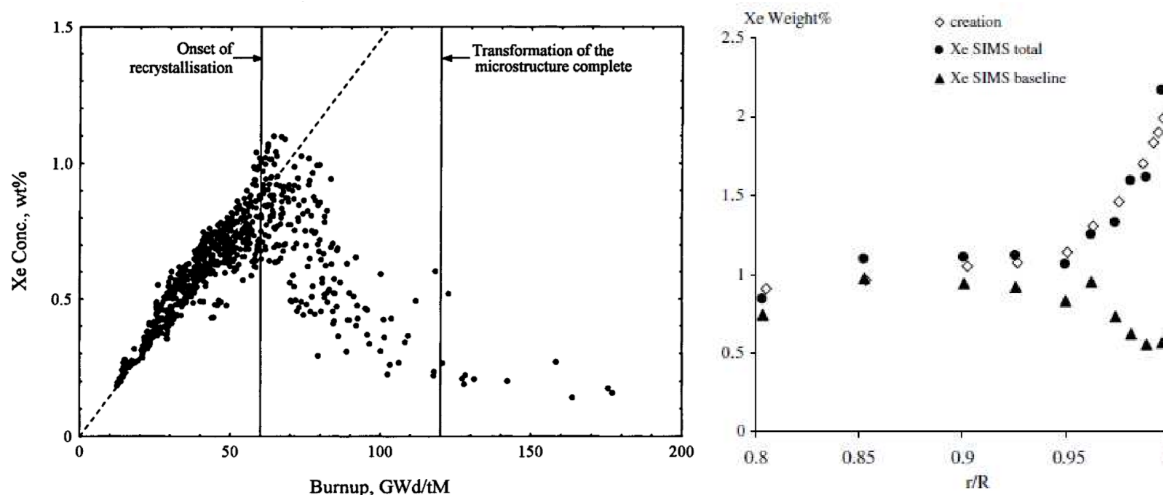


FIGURE 1.20 – a) à gauche, mesures de Xe par EPMA dans des pastilles d'UO₂ en fonction du taux de combustion. b) à droite, comparaison entre les mesures de Xe relevées au SIMS (total) et les calculs de création de Xe dans une pastille d'UO₂ irradiée à fort taux de combustion [NDL08].

Pression des bulles HBS : les porosités HBS contenant du gaz sont pressurisées. La pression dans les bulles joue un rôle important pour les problématiques accidentelles, notamment en APRP. La pression dans les bulles peut être estimée avec l'équation de Van Der Waals [NDL08]. Pour des volumes de gaz de $9 \cdot 10^{-5}$ et $10 \cdot 10^{-5}$ m³/mol, à un taux de combustion local de 105 et 120 GWj/tM, pour une température de 650 °K, la pression dans les bulles est estimée entre 70 et 90 MPa. Par exemple, la figure 1.21 [UKH06] présente l'évolution de la pression d'équilibre dans une bulle en fonction de sa taille, définie comme $P_{eq} = 2\gamma_s/r$, avec γ_s la tension superficielle estimée et la compare aux valeurs de pression relevées expérimentalement dans les bulles selon leur rayon. La valeur indicative de P_{crack} symbolise l'estimation de pression à partir de laquelle le combustible risque de se fissurer. Elle est calculée par l'expression $P_{crack} = 2\pi\gamma_f E / (3Ar)^{0.5}$ avec γ_f , énergie de fracturation, E le module d'Young du matériau, A un facteur de forme lié à la géométrie de la bulle et r, le rayon de la bulle.

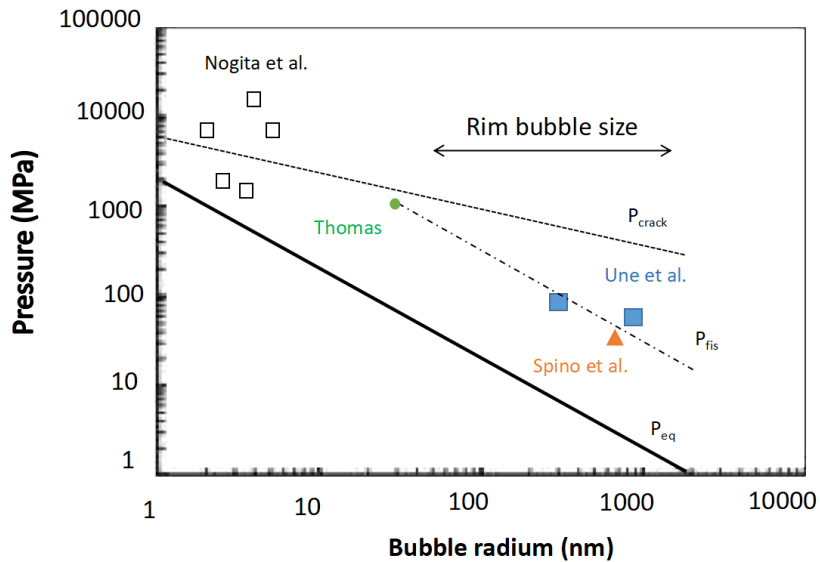


FIGURE 1.21 – Relation entre le rayon et la pression dans les bulles [UKH06]/

Toutes les pressions relevées expérimentalement sont estimées inférieure à la valeur de la pression critique P_{crack}

Évolution de la morphologie des grains : la restructuration HBS se caractérise par la subdivision des grains initiaux en très petits grains de l'ordre du dixième de micron. Les grains résultant peuvent être polyédriques ou ronds. Ces derniers grains arrondis sont présents autour des porosités HBS. Cette nouvelle structure est appelée « cauliflower » (choux-fleur en français) à cause de l'aspect des petits grains formés [Bar]. La subdivision des grains est attribuée à l'accumulation des défauts cristallographiques (accumulation de lacunes, de dislocations) conduisant à un excès d'énergie dans le réseau cristallin. Le matériau l'accomode en se restructurant [LB09]. Les grains originaux de l' UO_2 standard d'une taille moyenne de $10 \mu m$, disparaissent au profit de grains plus petits submicroniques, présentant une orientation aléatoire [TBC98]. Encore aujourd'hui l'origine de la restructuration fait débat dans la littérature. Les hypothèses faites donnent la restructuration comme débutant autour des porosités [SVC96] ou préférentiellement depuis les JDG originaux du fait de l'existence d'une précipitation de gaz dans des nanobulles fermées [UHN⁺00]. Néanmoins, cette dernière affirmation est en désaccord avec les résultats provenant du travail de Noirod [NDL08] qui montrent que les bulles initiales et la structure HBS ne commencent pas nécessairement aux joints de grains.

Au sein de la pastille, la zone HBS en périphérie de pastille est précédée par une zone en restructuration partielle des grains (cf figure 1.22 [BKTL09]). Dans cette zone, des bulles intergranulaires et des bulles intragranulaires sont observées au sein des grains initiaux quand le développement HBS est encore limité. Cette restructuration partielle peut débuter, soit aux joints de grains, soit à l'intérieur des grains. A droite de la figure 1.22, la microstructure a été observée entre 56 et $74 \mu m$ du bord de la pastille, la restructuration HBS est incomplète et l'amorce des sous grains est visible. Dans la zone HBS entièrement restructurée (cf figure 1.22 gauche), la taille moyenne des grains restructurés est comprise en majorité entre $0,2$ et $0,6 \mu m$ d'après les résultats de la figure 1.23 [SSSCB06]. A fort taux de combustion et en périphérie de pastille ($r/r_0=1$) la fréquence des grains inférieurs au micron est élevée.

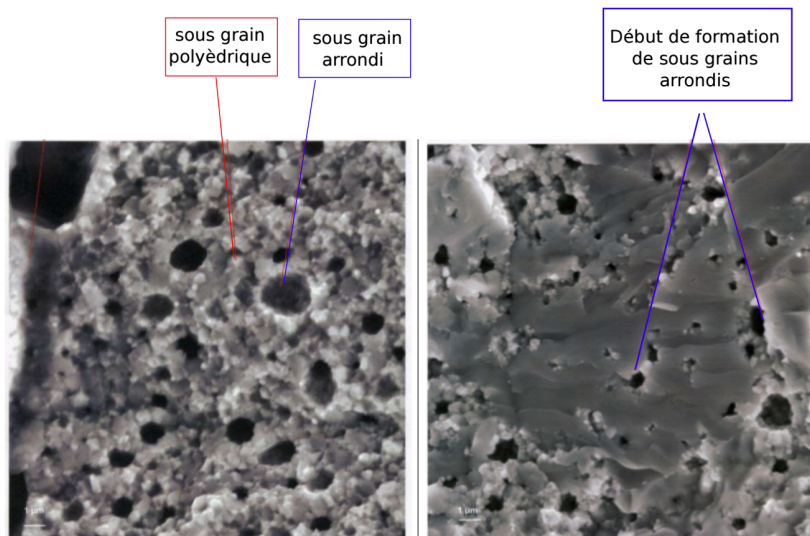


FIGURE 1.22 – Examens MEB de deux fractographies montrant l'évolution radiale de la microstructure HBS en périphérie d'un combustible irradié 6 cycles (72.8 GWj/tM crayon). A gauche le combustible est complètement restructuré HBS (130GW j/tM localement) [BKTL09]. A droite, le combustible est en cours de restructuration HBS.

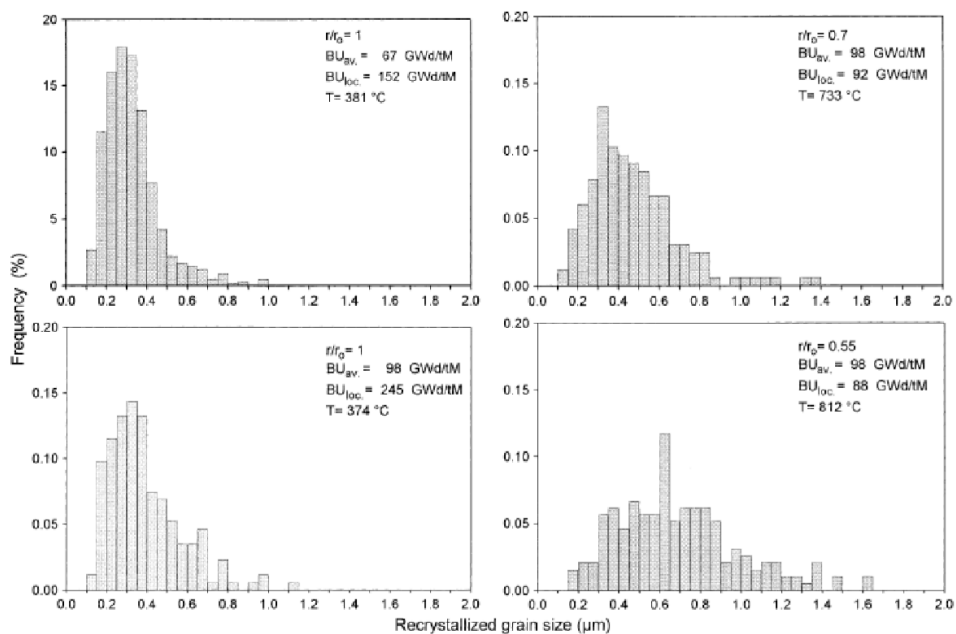


FIGURE 1.23 – Distribution de la taille des grains dans le combustible en fonction du taux de combustion moyen pastille et du taux de combustion local au sein de la zone HBS [SVC96].

Problématiques liées à la restructuration à fort taux de combustion : bien que les taux de combustion d'amorçage de la restructuration HBS semblent bien identifiés aujourd'hui, de nombreuses questions restent en suspens sur l'origine de la restructuration HBS et notamment sur ses mécanismes de restructuration. Le facteur principal de restructuration est donné comme étant l'accumulation excessive de défauts dans le réseau cristallin (engendrés par les effets de l'irradiation). La restructuration est liée à la formation de nœuds de dislocation [NU94], de défauts planaires [NDL08]

ou d'une distribution non homogène de lacunes. Tous ces défauts produisent une instabilité dans le réseau polycristallin et augmentent l'énergie locale du système. Ils mènent le matériau à se restructurer pour évacuer cette énergie et retrouver un équilibre plus favorable dans une microstructure HBS à petits grains. L'accumulation des produits de fission dans le réseau cristallographique est considéré comme un facteur moteur de la restructuration, notamment la présence de Pu [UNKI92], [NDL08], [NPY+06].

Deux mécanismes de formations sont aujourd'hui retenus [Boi13] pour la formation de la restructuration HBS : la cristallisation et la polygonisation. Les travaux de Nogita sur la cristallisation [NU94], [NU95] font l'hypothèse que les nœuds de dislocations présents dans les grains sont à l'origine de la subdivision du grain. Ces sous-grains grandiraient ensuite par cristallisation en captant les gaz de fission qui forment des bulles pressurisées. Le mécanisme de polygonisation fait l'hypothèse qu'il existe une subdivision des grains originaux en sous grains, à partir de l'accumulation de défauts ponctuels et des dislocations [MM97], [SKR+02].

1.2.2 Zone HBS du combustible UO_2 irradié à fort taux de combustion en fonctionnement normal : comportement mécanique en conditions d'APRP

Le paramètre clef du comportement du combustible en APRP est la quantité de gaz en position intergranulaire (du point de vue terme source) d'où l'importance des zones restructurées, où cette quantité est particulièrement importante, plus précisément dans les bulles inter-granulaires HBS. Ce gaz est susceptible d'être relâché en transitoire APRP, en particulier dans les zones périphériques les plus sollicitées par le transitoire thermique. Certains essais (essais GASPARD [PFPR03] : traitements thermiques) mettent en évidence un seuil de température à partir de laquelle un relâchement important de gaz de fission est observé. Ce relâchement correspond au « déstockage » du gaz intergranulaire des zones restructurées. La proportion de gaz relâchée au cours de ce pic augmente avec le taux d'irradiation. Pour un combustible UO_2 , irradié 6 cycles, la part de gaz aux joints de grains dans les zones restructurées HBS est estimée à environ 50 % de l'inventaire total des gaz stockés en intergranulaires [Bar].

En condition d'APRP, nous supposons à ce jour que le relâchement des gaz de fission de la zone HBS est induit par un mécanisme de fracturation des joints de grains. Différents mécanismes de facturation ont été postulés [NHU99], faisant intervenir le taux de porosité (porosité = bulles HBS et porosité de fabrication résiduelle), la pression dans ces porosités et la contrainte à rupture du combustible. La température seuil de ballonnement et éclatement de la gaine se situe entre 700 et 800 °C lors d'un transitoire de type APRP, nous nous intéresserons donc dans cette thèse au mécanisme de fracturation des joints de grains qui conduit au relâchement des gaz de fission de la zone HBS. Pour expliquer ce phénomène, l'hypothèse avancée aujourd'hui serait que les bulles HBS inter-granulaires montent en pression lors du transitoire thermique et conduisent à un endommagement et une décohésion des JDG lorsque la contrainte de rupture de ceux-ci est atteinte. Dès lors les gaz de fission contenus dans ces bulles finissent par être relâchés dans les volumes libres du crayon si l'endommagement initié aux JDG conduit à des fissures débouchantes.

Par une approche micro-mécanique, l'objectif de la thèse est donc de développer un critère de rupture de la zone HBS de l' UO_2 en condition d'APRP. La démarche et le développement de ce critère sont exposés dans les chapitres suivants.

Chapitre 2

Principe de l'approche micromécanique suivie et choix des méthodes pour l'étude du comportement à rupture de la zone HBS du combustible UO_2

L'objectif de ce chapitre est d'exposer les étapes de la démarche générale de changement d'échelles suivie pour étudier le comportement à rupture de la zone HBS du combustible. Le critère de rupture homogénéisé auquel nous souhaitons aboutir doit être utilisable par un industriel c'est à dire qu'il doit être performant en temps de calcul tout en respectant les attentes physiques définies au chapitre précédent.

Dans un premier temps, nous rappellerons la motivation qui nous pousse à adopter une approche par changement d'échelles, puis nous nous focaliserons sur la description des trois grandes étapes de l'approche, qui sont :

- **la représentation**, cette étape de description du matériau, nécessaire pour obtenir un modèle géométrique représentatif de la zone HBS (VER), constitue le deuxième paragraphe. Cette étape sera détaillée dans le chapitre 3.
- **la localisation**. Nous verrons ici le choix des conditions aux limites et des lois de comportement. Nous nous focaliserons sur deux approches valides pour notre problème : les modèles de zones cohésives ainsi que l'approche variationnelle de la mécanique de la rupture. Le modèle utilisé qui dérive des modèles de zones cohésives sera développé dans le chapitre 5.
- enfin, **l'homogénéisation** sera décrite dans une dernière partie. Nous exposerons les fondements de l'homogénéisation ainsi que les principes de la méthode NTFA. Le lien entre cette méthode de réduction de modèles et l'établissement d'un critère de rupture homogénéisé sera détaillé au chapitre 6.

2.1 Motivation

Le comportement macroscopique d'un matériau est lié à sa microstructure. Au cours des dernières décennies, par une approche dite déductive (cf. Zaoui [BBG⁺01a]), des travaux ont permis de mieux rendre compte du caractère hétérogène de la matière aux petites échelles dans la modélisation ainsi que son impact sur le comportement à l'échelle macroscopique. La modélisation par changement d'échelles, ou la démarche par homogénéisation, consiste à substituer un Milieu Homogène Équivalent (MHE) à un milieu hétérogène. Elle a pour but de déterminer les propriétés d'un matériau homogène en considérant la microstructure et les différentes phases qui composent le matériau hétérogène. Ces

propriétés sont à définir sur un Volume Élémentaire Représentatif (VER), qui comprend l'ensemble des constituants du matériau étudié. Un constituant est considéré comme un domaine à l'intérieur duquel les propriétés physiques sont supposées homogènes. Le but de cette modélisation est de simplifier la représentation du milieu hétérogène. Elle permet d'estimer le comportement de matériaux homogènes à élaborer et d'améliorer le caractère prédictif des lois de comportement.

2.2 Représentation

Cette étape consiste à construire un VER, représentatif du milieu hétérogène considéré (ici du combustible UO_2 restructuré avec des bulles intergranulaires HBS). Il faut définir les constituants et préciser leur répartition. La construction du VER doit dans un premier temps vérifier la notion de séparation des échelles.

2.2.1 Séparation des échelles

Pour pouvoir passer de l'échelle des hétérogénéités, échelle dite microscopique (dans notre cas les bulles HBS, comprises entre 0,2 et 2 μm), à l'échelle macroscopique du matériau (ici la zone restructurée HBS de la pastille combustible, en périphérie de pastille d'une épaisseur de 100 à 200 μm), on doit dans un premier temps établir les grandeurs caractéristiques présentées sur la figure 2.1.

La taille caractéristique de l'échelle microscopique, d , correspond à la dimension des hétérogénéités (bulles HBS ici). Cette échelle ne doit pas être trop fine afin que la théorie de la mécanique des milieux continus puisse être appliquée. Dans la zone HBS du combustible UO_2 , les bulles intergranulaires ont un diamètre de l'échelle du micron. La mécanique des milieux continus s'applique. L correspond à la dimension de la structure. La longueur l est la taille caractéristique du VER. Elle correspond à la dimension du volume sur lequel les calculs doivent être réalisés. Elle est choisie selon ces critères :

- $l \ll L$: la structure de dimension L doit pouvoir être considérée comme un milieu continu. Le volume, de dimension l , doit pouvoir être considéré comme un point à l'échelle de la structure. De plus, les relations entre les moyennes doivent rester les mêmes dans tous les volumes de la structure de dimension supérieure à l .
- $l \gg d$: cette condition garantit, que le comportement global du matériau possédant une microstructure aléatoire, reste identique quelque soit le point considéré.

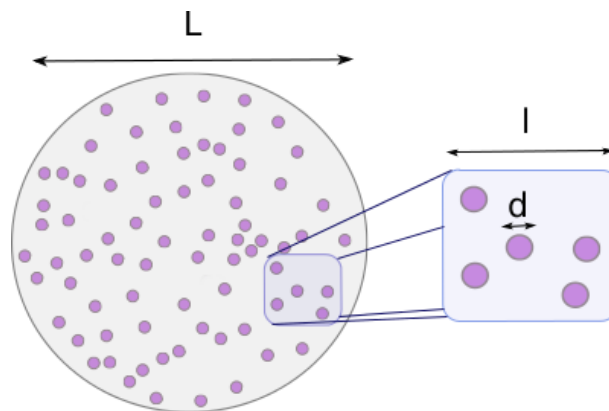


FIGURE 2.1 – Echelles d'analyses [BBG⁺01a]

L'application de ces hypothèses à notre étude de la zone HBS donnerait : la taille du VER représentatif de la zone HBS doit être grande devant les hétérogénéités (bulles HBS, entre 0,2 et 2 micromètres)

et petite face à l'épaisseur de la zone HBS de la pastille combustible (d'environ 100 à 200 μm). En considérant un VER d'une longueur caractéristique de $l=10 \mu\text{m}$, soit un rapport d'échelle de 10 entre le diamètre des hétérogénéités (bulles HBS) et la longueur caractéristique du VER, il existerait un rapport d'échelle variant de 10 à 20 entre la longueur L du VER et l'épaisseur l de la zone HBS (échelle macroscopique). Ces rapports d'échelles sont acceptables sous les hypothèses de séparation d'échelles, et seront vérifiés plus tard lors du détail des calculs de représentation dans le chapitre 3.

Par ailleurs, comme la fraction volumique des pores de fabrication après la restructuration HBS est faible, ils ne seront pas pris en considération dans cette étude. Si l'ensemble de ces conditions (rapport entre les échelles) sont respectées, il est alors possible de représenter un Volume Élémentaire Représentatif (VER) du matériau hétérogène considéré. On peut donc à présent passer à l'étape de représentation d'un VER.

2.2.2 Représentation du VER

Il faut à présent construire le VER en considérant les échelles microscopique et macroscopique que l'on suppose fixées. Dans le cas des milieux périodiques, où le VER se réduit à une cellule de base de l'arrangement périodique, cette étape de représentation conduit à une description déterministe du milieu hétérogène (cf. [BBG⁺01a]).

Dans le cas de milieux aléatoires, la description mécanique et géométrique ne peut plus être déterministe. Deux VER voisins ne seront jamais superposables (notamment car l'arrangement des hétérogénéités est aléatoire) même si, macroscopiquement, leur comportement est identique. Seule une description statistique est alors possible pour les représenter (cf. [BBG⁺01a]).

Il faut donc identifier les différentes phases (caractéristiques mécaniques différentes) et leur comportement. Dans notre cas on considérera les bulles HBS noyées dans une matrice homogène isotrope, bien que la zone HBS soit un matériau polycristallin (grains dont le diamètre moyen est submicroscopique). Il est par conséquent nécessaire d'extraire les différents paramètres géométriques pertinents, c'est à dire ceux qui peuvent influencer le comportement mécanique. Les paramètres à identifier sont détaillés et déterminés lors du chapitre 3.

Conclusion sur la représentation

Cette étape de la méthode micromécanique est primordiale pour la construction du VER. Travaillant sur un milieu aléatoire, la notion de représentativité est difficile à définir car elle est fonction de la propriété étudiée. Différents critères sont fréquemment employés pour dimensionner le VER :

1. ses propriétés effectives n'évoluent plus quand son volume augmente.
2. son comportement effectif est indépendant des conditions aux limites appliquées.
3. son comportement effectif est identique pour différentes réalisations.

Ces conditions mènent à déterminer l'évolution des propriétés effectives de VER de tailles croissantes et de tester différentes conditions aux limites.

Fixer la taille du VER en satisfaisant toutes ces conditions peut s'avérer difficile et conduire à des VER de grande dimension [For04]. La taille du VER est fonction du milieu étudié, notamment selon la fraction volumique, la morphologie et la dimension des constituants des différentes phases, mais également des propriétés de ces constituants ainsi que le contraste entre chacune des phases. Nous reviendrons sur l'étude détaillée de la représentation de la zone HBS de l' UO_2 au cours du chapitre 3. Il faut à présent choisir une loi de comportement adéquate pour l'étude du comportement à rupture de la zone HBS. C'est l'objet de l'étape de localisation présentée dans la partie suivante.

2.3 Localisation

2.3.1 Principe

Dans cette étape, il s'agit d'analyser la réponse mécanique du VER, de volume V , à un chargement.

Notations utilisées :

Par la suite on désignera par :

\mathbf{x} ,	le vecteur position au sein du VER
V ,	le volume du VER,
∂V ,	le contour du VER,

ainsi que les grandeurs mécaniques :

$\mathbf{u}(\mathbf{x})$,	le champ microscopique de déplacements,
$\boldsymbol{\sigma}$,	le champ microscopique de contraintes,
$\boldsymbol{\varepsilon} = \frac{1}{2} \left(\text{grad}(\mathbf{u}(\mathbf{x})) + {}^T \text{grad}(\mathbf{u}(\mathbf{x})) \right)$,	le champ microscopique de déformations,
$\bar{\boldsymbol{\sigma}}$,	le tenseur macroscopique de contraintes,
$\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}$,	le tenseur macroscopique de déformations.

En localisation, on cherche les champs microscopiques (locaux) de contraintes $\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x})$ et de déformations $\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{x})$, induits au sein du VER par le chargement macroscopique (global) de déformations $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^0$ ou de contraintes $\bar{\boldsymbol{\sigma}}^0$. Dans ce cadre, la moyenne volumique $\langle f \rangle$ d'un champ $f(\mathbf{x})$ défini en tout point \mathbf{x} de V , est donnée par :

$$\langle f \rangle = \frac{1}{|V|} \int_V f(\mathbf{x}) dV. \quad (2.1)$$

En se basant uniquement sur le comportement mécanique, la seule relation permettant le lien entre grandeurs locales et globales est que la moyenne des déformations et la moyenne des contraintes doivent être respectivement égales à la déformation et à la contrainte macroscopique. On écrit :

$$\langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} \quad \text{et} \quad \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle = \bar{\boldsymbol{\sigma}}. \quad (2.2)$$

Une difficulté du problème de localisation est de déterminer les conditions à appliquer au bord du VER pour satisfaire ces relations. Une solution est d'imposer un chargement homogène sur son contour ∂V . On vérifie l'égalité entre la moyenne ($\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}$; $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$) des champs locaux et le champ macroscopique imposé ($\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^0$; $\bar{\boldsymbol{\sigma}}^0$) par application du théorème de Gauss, selon les conditions aux limites, détaillées dans la partie suivante. On détaillera également la notion de conditions aux limites périodiques, qui seront utilisées dans notre modélisation.

2.3.2 Conditions aux limites

Pour être représentatif, les chargements appliqués au VER doivent correspondre aux sollicitations qui lui seraient appliquées au sein de la structure globale étudiée. Dans cette partie, nous détaillerons les conditions homogènes au contour ainsi que les conditions aux limites périodiques, qui seront utilisées plus tard aux cours des simulations (cf. chapitres 4 et 5).

Contraintes homogènes sur le contour (CH) :

On impose la condition $t^d(\mathbf{x}) = \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{n} = \bar{\boldsymbol{\sigma}}^0 \cdot \mathbf{n}$ sur ∂V où $\bar{\boldsymbol{\sigma}}^0$ est une contrainte macroscopique homogène, \mathbf{n} la normale unitaire extérieure au contour. On vérifie, si $\boldsymbol{\sigma}$ est un champ de contrainte statistiquement admissible, que $\bar{\boldsymbol{\sigma}} = \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle = \bar{\boldsymbol{\sigma}}^0$. Ce résultat se retrouve par l'application du théorème de Gauss et de l'équation d'équilibre (en l'absence de forces de volume et en statique). La déformation macroscopique est alors par définition $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}} = \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle$.

Déformations homogènes sur le contour (DH) :

On impose la condition de déplacement $\mathbf{u}^d(\mathbf{x}) = \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^0 \cdot \mathbf{x}$ sur ∂V où $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^0$ est une déformation macroscopique homogène. On vérifie, si $\boldsymbol{\varepsilon}$ dérive du champ de déplacement \mathbf{u} cinématiquement admissible avec \mathbf{u}^d , que $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}} = \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^0$. Ce résultat se retrouve par l'application du théorème de Gauss et la relation de compatibilité des déformations. La contrainte macroscopique est alors par définition $\bar{\boldsymbol{\sigma}} = \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle$.

Conditions aux limites périodiques (CLP) :

$\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{n}$ doit être anti-périodique (noté $\#$) sur ∂V . Soit $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^0$ une déformation macroscopique homogène. Les conditions aux limites périodiques consistent à imposer un déplacement $\mathbf{u}(\mathbf{x}) = \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^0 \cdot \mathbf{x} + \tilde{\mathbf{u}}(\mathbf{x})$ avec $\tilde{\mathbf{u}}(\mathbf{x})$ un déplacement périodique (noté $\#$). Ce déplacement prend par conséquent les mêmes valeurs en deux points homologues sur les côtés opposés de ∂V . On vérifie que $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}} = \langle \boldsymbol{\varepsilon} \rangle = \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}^0$. La contrainte macroscopique est alors, par définition $\bar{\boldsymbol{\sigma}} = \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle$.

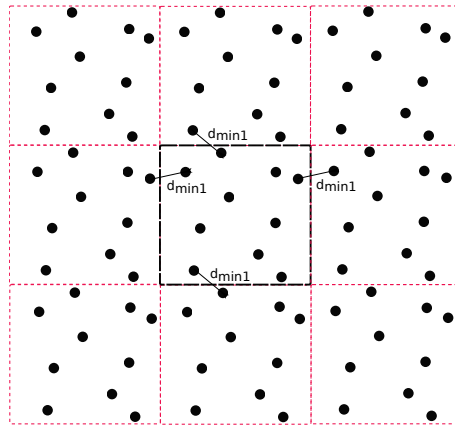


FIGURE 2.2 – Milieu périodique [BBG⁺01b].

En théorie, un VER a été choisi suffisamment grand afin que son comportement effectif ne soit pas dépendant des conditions aux limites utilisées pour son chargement. Cependant, en pratique, les résultats obtenus convergent pour différentes conditions aux limites lorsque la taille du VER augmente, mais cette convergence peut être lente. Il est montré (cf. figure 2.3 dans Bornert et al. 2001b [BBG⁺01b]) que les conditions aux limites homogènes CH et DH fournissent un encadrement du comportement effectif et que les conditions aux limites périodiques CLP donnent une meilleure estimation des propriétés effectives par rapport aux conditions homogènes. Ces conditions aux limites sont ainsi largement utilisées pour analyser le comportement de VER. Elles sont souvent appliquées à un volume géométriquement périodique (voir figure 2.2). Il est possible de générer des microstructures aléatoires en imposant une condition de périodicité géométrique afin de pouvoir se placer dans ce cas [BMR⁺07, SL06].

Dans le cadre de nos travaux de thèse, nous emploierons les conditions aux limites de périodicité sur le bord du VER lors des calculs de localisation (chapitres 4 et 5).

A présent il reste à définir une loi de comportement qui permette d'étudier l'évolution de la fissuration dans la matrice combustible. L'étape de localisation doit permettre de déterminer les champs locaux de déformation et de prévoir la rupture. Il existe un grand nombre de méthodes permettant de modéliser la rupture et le suivi de l'évolution de la fissuration.

2.3.3 Brève revue des méthodes existantes pour l'analyse de la fissuration

Dans cette partie nous nous intéressons aux méthodes praticables pour décrire la rupture fragile de la zone HBS de l' UO_2 .

Il existe des méthodes héritées des travaux de Griffith; il est possible de citer les approches de Kaplan [Kap61], Mazars [MPC96]. Ces méthodes permettent de donner un niveau d'énergie à partir duquel une fissure existante peut se propager mais ne permettent pas de décrire l'initiation de la fissure.

Il existe également des approches basées sur la description de l'endommagement au sein du matériau [CL96]. Il définit alors une variable d'endommagement (noté souvent a ou d) qui traduit l'apparition des défauts au cours du chargement. Les bases sont posées par Kachanov en 1986 [Kac86]. D'autres travaux de modèles de rupture sont donnés par Bazant [BO83].

Une autre manière de modéliser la rupture fragile consiste à appliquer la méthode des éléments érodés. Cette méthode permet de représenter la fissuration sans en connaître nécessairement son chemin. La plupart des approches ne retirent pas les éléments endommagés de la modélisation : elles fixent uniquement une valeur de contrainte nulle dans les éléments étant rompus (soit endommagés à 100%), en imposant une rigidité nulle dans les éléments concernés. L'énergie de dissipation est calculée en utilisant un modèle diffus en amont de la fissure. Un inconvénient de cette méthode est qu'elle est fortement dépendante du maillage. Les principaux contributeurs sont Song et al. [SWB08], Pandolfi et Ortiz [PO12] dans le cadre de la rupture fragile, Schmidt et al. [SFO08], où la déformation moyenne est considérée à son sens binaire : les éléments sont considérés intacts ou rompus. L'approche des éléments érodés (cf. [JS87], [BL87], [BHP10], [Neg03]) converge vers l'approche de Griffith pour des raffinements de maillage suffisamment fins.

Se prêtent également à notre étude, les approches à gradient (ex : approche variationnelle régularisée de la rupture [FM88]), ainsi que les méthodes de partition de l'unité, notion sur laquelle se base les méthodes dites « level set » et X-FEM (Extended Finite Element Method). Cette dernière fut développée par Belytschko et al. ([BB99], [MDB99], [MB02]), les X-FEM sont généralement utilisés pour modéliser les discontinuités (fissures, interfaces et géométries complexes). Elles ont pour principe d'enrichir les fonctions de forme dans les nœuds voisins de la fissure, permettant de traduire le saut de déplacement, induit par la discontinuité. Ces méthodes sont donc généralement employées pour représenter des problèmes possédant des singularités, des maillages réguliers de microstructures poreuses (cavités, inclusions,...), ou dans tous milieux où un défaut peut être décrit par une base de fonctions polynomiales appropriées. Ces méthodes permettent la convergence sur des problèmes complexes comportant des discontinuités spatiales en accroissant cependant le nombre de degrés de liberté du maillage, en ajoutant des points d'intégration autour de la discontinuité, d'où un sensible accroissement des temps de calcul.

Néanmoins, cette partie n'a pas vocation à réaliser une revue de tous les différents modèles de rup-

ture existants. Le lecteur intéressé pourra par exemple consulter l'analyse comparative des modèles de la rupture fragile faite par T.Rabczuk [Rab12], complétant les approches mentionnées précédemment. Nous nous attacherons alors à décrire par la suite les méthodes qui seront utilisées directement pour l'étude de la localisation dans la zone HBS. Nous utiliserons pour cela un modèle local, dérivé d'un modèle de zones cohésives, appelé DDIF2 [MSTC08]. Ce modèle utilise une approche d'endommagement continu additionnée d'une loi adoucissante linéaire comme fonction de la déformation de fissuration. Comme nous le verrons plus en détails au chapitre 5, ce modèle est comparable à une loi de zones cohésives à la différence que l'ouverture de la fissure est remplacée par une déformation moyenne inélastique dans l'élément comportant la fissure.

Bien que l'étude du comportement soit possible par les modèles évoqués précédemment (X-FEM, ou éléments érodés), le choix d'utiliser DDIF2 a été effectué car ce modèle était déjà implémenté au format MFront [CE14] et utilisable via le code éléments finis Cast3M [cas90], avec une méthodologie permettant de décrire l'initiation et la propagation de la fissure.

Par conséquent, afin de mieux comprendre le modèle DDIF2 utilisé et détaillé lors du chapitre 5, nous proposons ici un rappel des modèles de zones cohésives.

2.3.4 Modèles de zones cohésives (MZC)

Les modèles de zones cohésives font l'hypothèse qu'il existe entre la partie du matériau rompu et la partie saine, une zone « cohésive ». Cette zone est régie par une relation reliant vecteur-contrainte et saut de déplacement. On peut considérer les modèles de zones cohésives comme une amélioration de la théorie de Griffith dans laquelle aucun critère d'initiation de fissure est énoncé. L'utilisation de ces modèles permet de décrire de manière locale l'apparition et l'évolution de la fissure en conservant l'énergie dissipée par unité de surface comme le critère de Griffith. Un modèle de traction-séparation est appliqué le long des lèvres de la fissure liant la contrainte cohésive transmise avec une discontinuité de surface par un saut de déplacement, caractérisé par un vecteur de séparation $[u]$.

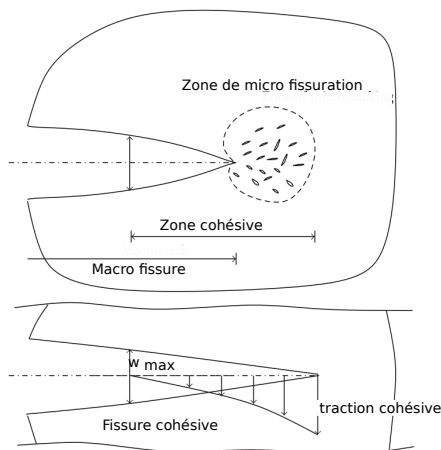


FIGURE 2.3 – Principe des modèles de zones cohésives [Rab12]

Parmi les pionniers de la théorie ayant menée aux modèles de zones cohésives, citons Dugdale [Dug60] et Barenblatt [Bar62], qui, dans les années 1960, prenaient en compte la friction dans un voisinage de grains métalliques. Les premières approches étaient d'abord limitées à la description des mécanismes de rupture de type mode-I (Hillerborg et al [HMP76]) pour modéliser la croissance de fissure dans le béton. Elles sont à présent capables de prendre en compte des cas de chargements complexes. Ces travaux ont été précurseurs dans l'utilisation des modèles de zones cohésives dans la

simulation par éléments finis (cf. Needleman [Nee88], Tveergard [TH92] et Ortiz [PO12] à la fin des années 1990). La méthode des zones cohésives est illustrée par la figure 2.3. Il s’agit de décrire l’état de contrainte qui règne au proche voisinage de la fissure.

D’un point de vue numérique, la zone cohésive est composée d’un élément fini de type plan dont les nœuds sont dédoublés et dont les points d’intégration se voient attribués un comportement endommageant identique à la démarche utilisée dans les modèles volumiques. La différence essentielle provient de la formulation des équations constitutives d’un élément plan, qui n’a pas d’épaisseur. Le principe des modèles de zones cohésives réside dans la description de la relation entre l’effort résistant, agissant contre l’ouverture de la fissure (le vecteur-contrainte cohésif R) et l’ouverture de la fissure (le vecteur saut de déplacement $[u]$) :

$$R = R([u]), R = \frac{\partial \varphi}{\partial [u]}, \quad (2.3)$$

où R , la vecteur-contrainte cohésif, dérive d’un potentiel surfacique φ .

L’un des paramètres primordiaux des modèles de zones cohésives est l’énergie dissipée par la fissure G_f . Dans le cas d’une rupture en mode I, l’énergie G_f s’exprime par :

$$G_f = \int_0^{[u]_{max}} R([u])d[u], \quad (2.4)$$

qui correspond à l’aire sous la courbe de la figure 2.4. $[u]_{max}$ est l’ouverture de fissure à partir de laquelle aucune force cohésive n’est transmise.

Différentes formes de lois $R([u])$ existent dans la littérature : loi polynomiale, loi exponentielle, loi trapézoïdale, loi bilinéaire, etc. Le lecteur intéressé pourra consulter pour plus de détails les références (Monerie [Mon00], [Bla13], Rabczuck [Rab12]). Globalement, tous les modèles cohésifs comportent la même structure qui se compose de trois parties :

- partie 1 : une augmentation de la contrainte « cohésive » jusqu’à une valeur maximale,
- partie 2 : un endommagement de la zone cohésive décrit par une décroissance de la contrainte cohésive jusqu’à son annulation quand le saut de déplacement atteint une valeur critique,
- partie 3 : une annulation de la contrainte cohésive correspondant à une zone totalement endommagée.

De plus, ces modèles offrent la possibilité de se coupler facilement avec d’autres phénomènes physiques non linéaires accompagnant la fissuration (contact, frottement, pression) [Mon00] ou de coupler les aspects thermiques et mécaniques aux niveaux des interfaces à travers des zones cohésives thermo-mécaniques (e.g. [PO12] et les références incluses).

Remarque sur la méthode utilisée en localisation pour calculer les champs locaux de la zone HBS

Le modèle DDIF2, dérivé d’un modèle de zones cohésives, permet de déterminer les champs de déformations à l’échelle locale. Cependant, ces résultats auraient pu tout aussi bien être obtenus à l’aide d’une autre méthode permettant de décrire l’initiation et la propagation de fissures. On présente donc à la suite, une autre méthode de localisation possible, **l’approche variationnelle de la rupture**. En effet, sa formulation se prête davantage à l’étape d’homogénéisation, nous y reviendrons lors de la description de cette étape. La prochaine partie présente donc l’approche variationnelle de la mécanique de la rupture.

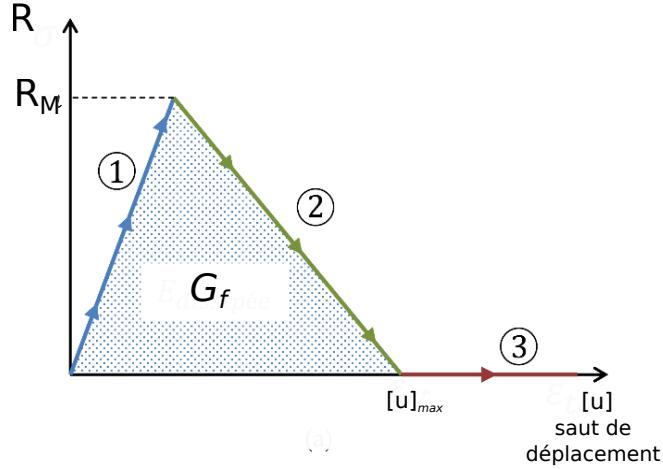


FIGURE 2.4 – Représentation schématique des trois parties d’un modèle de zones cohésives (en mode d’ouverture de fissure).

2.3.5 Approche variationnelle de la mécanique de la rupture

Le modèle original de Francfort et Marigo [FM88]

L’approche variationnelle de la mécanique de la rupture a pour origine les travaux de Francfort et Marigo [FM88] qui, dans le but de remédier à certaines insuffisances de l’approche énergétique classique, ont proposé de reformuler le problème comme un problème de minimisation d’énergie. Dans cette approche de moindre énergie, les fissures sont traitées comme des surfaces de discontinuité du champ de déplacement et l’énergie à minimiser est composée de la somme de deux termes : un premier terme correspondant à l’énergie élastique du système, calculée dans la partie non fissurée du domaine et un second terme proportionnel à la surface de l’ensemble des fissures dans l’esprit de la théorie de Griffith. Plus précisément, en notant Ω le domaine occupé par le solide et Γ l’ensemble des points de discontinuité du déplacement caractérisant l’état de fissuration, le problème consiste à rechercher à chaque instant du chargement le minimum global de la fonctionnelle :

$$\int_{\Omega-\Gamma} \frac{1}{2} \mathbf{A}_0 : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) \, dx + \int_{\Gamma} G_c \, d\mathbf{S}, \quad (2.5)$$

où \mathbf{A}_0 représente le tenseur de rigidité du matériau et G_c sa ténacité. Le chargement considéré ici est un chargement de type déplacements imposés : $\mathbf{u} = \mathbf{U}$ (fonction donnée de (x,t)) sur une partie $\partial\Omega_d$ du bord. Par ailleurs, afin de représenter le caractère irréversible de l’évolution de la fissuration, la minimisation de (2.5) s’effectue sous la condition que l’ensemble des points de discontinuité Γ ne peut pas décroître :

$$\Gamma \supseteq \cup_{s < t} \Gamma(s). \quad (2.6)$$

Par rapport au modèle de Griffith, le modèle de Francfort et Marigo a l’avantage de permettre l’amorçage et la propagation de fissures n’importe où dans le milieu. En revanche, ainsi formulé, il entre dans la famille des problèmes à surface de discontinuité libre, problèmes dont la résolution numérique reste encore aujourd’hui délicate.

Régularisation et minimisations alternées

Pour approcher les minima de (2.5), une méthode numérique efficace a été proposée par Bourdin [Bou98], Bourdin et al. [BFJJ00], Bourdin [Bou07]. Son principe consiste à régulariser la fonctionnelle

à minimiser en s'inspirant d'une méthode initialement proposée par Ambrosio et Tortorelli [AT90] pour résoudre des problèmes apparaissant en segmentation d'images (problèmes dits de Mumford-Shah [MS98]). La fonctionnelle initiale (2.5) est approchée par la fonctionnelle régularisée :

$$\int_{\Omega} \frac{1}{2} ((1 - \alpha)^2 + k_{\eta}) \mathbf{A}_0 : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) \, d\mathbf{x} + \int_{\Omega} G_c \left(\frac{\alpha^2}{4\eta} + \eta \nabla \alpha \nabla \alpha \right) \, d\mathbf{x}, \quad (2.7)$$

où le déplacement \mathbf{u} est maintenant continu, et où le champ scalaire α , qui varie entre 0 et 1, indique une zone de fissuration lorsque sa valeur est proche de 1. η est le petit paramètre de régularisation destiné à tendre vers 0 pour l'obtention des résultats de convergence et k_{η} est un reste de rigidité permettant d'assurer la définie positivité du tenseur d'élasticité lorsque $\alpha = 1$. Une forme plus générale de fonctionnelle régularisée est donnée dans Braides [Bra98] :

$$\mathcal{E}_{\eta}(\mathbf{u}, \alpha) = \int_{\Omega} \frac{1}{2} (a(\alpha)^2 + k_{\eta}) \mathbf{A}_0 : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) \, d\mathbf{x} + \int_{\Omega} G_c \left(\frac{w_1(\alpha)}{\eta} + \eta \nabla \alpha \nabla \alpha \right) \, d\mathbf{x}. \quad (2.8)$$

Il y est montré que la fonctionnelle (2.8) gamma-converge vers la fonctionnelle de départ (2.5) quand η tend vers 0 dès lors que $a(\alpha)$, $w_1(\alpha)$ et k_{η} satisfont les propriétés :

- $a(\alpha)$ est une fonction continue décroissante de α qui s'annule en $\alpha = 1$.
- $w_1(\alpha)$ est une fonction croissante de α , nulle en $\alpha = 0$ et telle que :

$$4 \int_0^1 \sqrt{w_1(\alpha)} \, d\alpha = 1. \quad (2.9)$$

- k_{η} est petit devant η .

Il reste que la fonctionnelle régularisée (2.8) (ou (2.7) qui est un cas particulier de (2.8)) n'est pas convexe par rapport au couple (\mathbf{u}, α) , de sorte que la recherche de minima globaux de (2.8) n'est pas chose aisée numériquement. Au mieux peut-on espérer trouver des minima locaux. A cette fin, Bourdin et al. [BFJJ00] proposent d'utiliser un algorithme de type minimisations alternées qui comme le nom l'indique consiste à minimiser la fonctionnelle de façon alternée, d'abord par rapport à \mathbf{u} à α fixé, puis par rapport à α à \mathbf{u} fixé et à itérer ainsi jusqu'à convergence. Après discrétisation en temps et supposant connu le couple $(\mathbf{u}_{n-1}, \alpha_{n-1})$ à l'instant t_{n-1} , le couple stationnaire (\mathbf{u}_n, α_n) à l'instant t_n est obtenu par le schéma itératif :

- Initialisation : $(\mathbf{u}_n^0, \alpha_n^0) = (\mathbf{u}_{n-1}, \alpha_{n-1})$

- Itération i :

1. Calculer, sous la contrainte $\mathbf{u} = \mathbf{U}_n$ sur $\partial\Omega_d$,

$$\mathbf{u}_n^i = \underset{\mathbf{u}}{\operatorname{argmin}} \mathcal{E}_{\eta}(\mathbf{u}, \alpha_n^{i-1}). \quad (2.10)$$

2. Calculer, sous la contrainte $\alpha \geq \alpha_{n-1}$ dans Ω ,

$$\alpha_n^i = \underset{\alpha}{\operatorname{argmin}} \mathcal{E}_{\eta}(\mathbf{u}_n^i, \alpha). \quad (2.11)$$

- Répéter l'itération jusqu'à ce que $(\mathbf{u}_n^i, \alpha_n^i)$ soit proche de $(\mathbf{u}_n^{i-1}, \alpha_n^{i-1})$.

Notons que la fonctionnelle régularisée $\mathcal{E}_{\eta}(\mathbf{u}, \alpha)$ est quadrique en \mathbf{u} . Il en résulte que l'étape 1 du schéma itératif se réduit à la résolution d'un problème d'équilibre élastique linéaire dont la rigidité donnée par $\mathbf{A}(\alpha) = (a(\alpha)^2 + k_{\eta}) \mathbf{A}_0$ dépend de α . De même, avec le terme quadratique en $\nabla \alpha$ dans l'expression de \mathcal{E}_{η} , l'étape 2 du schéma itératif se réduit à la résolution d'un problème de type laplacien, avec toutefois dans ce cas la difficulté de satisfaire à chaque itération i du pas n la contrainte d'irréversibilité $\alpha \geq \alpha_{n-1}$ dans Ω , voir à ce propos [Bou98], [AMM09] et [LRC09].

Interprétation en termes de modèles d'endommagement non locaux

D'un point de vue mathématique, nous avons vu au paragraphe précédent que les modèles régularisés présentent l'avantage de s'appuyer sur des résultats rigoureux de gamma-convergence lorsque le petit paramètre η tend vers 0. D'un point de vue mécanique, Pham et al. [PM10b] remarquent que les modèles régularisés ainsi introduits peuvent s'interpréter comme des modèles d'endommagement non locaux [PCZ87] [FN96] [BM07] [PM10a]. Dans ce contexte, le travail de déformation y est écrit sous la forme :

$$\mathcal{W}_\ell(\mathbf{u}, \alpha) = \frac{1}{2} \mathbf{A}(\alpha) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) + w(\alpha) + \frac{1}{2} w_1 \ell^2 \nabla \alpha \nabla \alpha, \quad (2.12)$$

où le scalaire α , qui varie entre 0 et 1, représente maintenant la variable interne d'endommagement, $\mathbf{A}(\alpha)$ le tenseur d'élasticité endommagé du matériau, $w(\alpha)$ l'énergie dissipée lorsque l'on fait passer l'état d'endommagement de 0 à α , et $w_1 = w(1)$ l'énergie dissipée dans le processus d'endommagement complet. L'aspect non local du modèle est dû à la présence du terme en $\nabla \alpha$. C'est la présence de ce terme en gradient d'endommagement qui introduit une dépendance au voisinage de la solution et évite ainsi certaines difficultés et pathologies liées aux fortes localisations des modèles d'endommagement locaux. Le paramètre ℓ introduit dans (2.12) a comme η dans (2.8) la dimension d'une longueur. En revanche, dans le contexte des modèles à gradient d'endommagement, il n'est plus considéré comme un petit paramètre de régularisation destiné à tendre vers 0 mais devient une longueur fixe caractéristique du matériau. Identifiant (2.12) à (2.8), on déduit de la condition de gamma-convergence (2.9) qu'énergie dissipée w , ténacité G_c et longueur ℓ sont liées par l'égalité :

$$G_c = 2\sqrt{2} \ell \int_0^1 \sqrt{w_1 w(\alpha)} d\alpha. \quad (2.13)$$

Extensions de l'approche

L'approche variationnelle proposée par Francfort et Marigo [FM88] en 1998 a connu depuis diverses extensions et applications. Citons entre autres, son extension et application à la propagation de fissures par effet de fatigue en faisant intervenir une énergie de surface de type Dugdale-Barenblatt [JM06], la prise en compte d'un contact unilatéral entre les lèvres des fissures [AMM09], la multifissuration et délamination de films minces [BBM09] ou encore plus récemment le rendu de schémas de fissuration complexes induits par des chocs thermiques [BMMP14] [SMM14]. Utilisant le cadre variationnel régularisé présenté précédemment, Miehe et al. [MWH10] [MHW10] ont proposé une reformulation du modèle et son implémentation numérique en termes de champ de phase. Nguyen et al. [NYZ⁺15] ont appliqué cette méthode champ de phase à la simulation de la microfissuration tridimensionnelle de matériaux cimentaires. Enfin, citons également à titre d'exemples les extensions récentes de l'approche à l'examen de problèmes de fracturation hydraulique [YB16] [MM16] [LMWW16].

2.4 Homogénéisation

2.4.1 Motivation

Dans cette étape, on cherche à homogénéiser le problème local pour obtenir les champs macroscopiques. Sans cette démarche, le problème local devrait être résolu en chaque point d'intégration à l'échelle de la structure. Cette augmentation du nombre de degrés de liberté pour résoudre le problème à l'échelle macroscopique, rend les besoins de calculs conséquents aussi bien en mémoire qu'en puissance. La résolution en devient impossible sans disposer de clusters de calcul performants. Pour cette raison, nous cherchons à obtenir un critère de rupture homogénéisé satisfaisant un industriel :

cette étape garantit un gain de temps important.

Pour permettre l'homogénéisation, il est utile de se référer à une formulation dérivée d'un principe variationnel, comme celle issue de l'approche variationnelle de la rupture. Par ailleurs, pour homogénéiser le problème variationnel (associé à l'expression (2.12) du travail de déformation), nous nous sommes intéressés aux méthodes d'homogénéisation déjà existantes dans la littérature. Une approche NTFA (Nonuniform Transformation Fields Analysis), a déjà été appliquée au combustible MOX, permettant l'homogénéisation du comportement viscoélastique vieillissant au sein de la matrice et des amas plutonifères et uranifères (cf thèse Largenton [Lar11]). La partie suivante introduit le principe et les hypothèses de la NTFA appliquée à des constituants standard généralisés. Nous verrons par la suite que le problème à résoudre dans ce cas prend une forme similaire au problème local de notre étude. Le lien avec l'établissement du critère de rupture homogénéisé pour la zone HBS sera développé au chapitre 6.

2.4.2 Analyse par champs de transformation non uniformes (NTFA)

L'objectif de cette partie est de présenter certains ingrédients et développements récents de la méthode NTFA initialement proposée par Michel et Suquet [MS03]. Considérant des matériaux composites dont les constituants ont un comportement standard généralisé, dans un premier temps, les champs locaux de variables internes sont décomposés sur une base réduite de modes. Puis, l'évolution des variables internes réduites associées à ces modes est formulée sur la base d'un principe variationnel incrémental. Nous verrons au chapitre 6 comment ces notions de modes et principe variationnel peuvent être repris afin d'établir un critère de rupture homogénéisé dans le contexte variationnel de la rupture.

Relations constitutives pour les constituants

Les composites considérés dans cette partie sont constitués de phases dont le comportement est standard généralisé au sens de [HN75]. Le comportement des phases est ainsi défini par la donnée de deux potentiels convexes : l'énergie libre W et le potentiel de dissipation φ . Les variables d'état locales sont la déformation microscopique ε et les variables internes, notées α , destinées à décrire les phénomènes irréversibles. La donnée de l'énergie libre W en fonction des variables d'état ε et α permet d'obtenir la contrainte microscopique σ et les forces thermodynamiques \mathcal{A} associées à α :

$$\sigma = \frac{\partial W}{\partial \varepsilon}(\varepsilon, \alpha), \quad \mathcal{A} = -\frac{\partial W}{\partial \alpha}(\varepsilon, \alpha), \quad (2.14)$$

tandis que le potentiel de dissipation φ lie l'évolution des variables internes α aux forces thermodynamiques associées \mathcal{A} :

$$\mathcal{A} = \frac{\partial \varphi}{\partial \dot{\alpha}}(\dot{\alpha}). \quad (2.15)$$

La plupart des modèles élasto-(visco)plastiques classiques peuvent être formulés dans ce cadre général par un choix approprié des deux potentiels W et φ (Germain et al. [GNS83], Lemaitre et Chaboche [LC94]). A titre d'exemple, le modèle élasto-viscoplastique en loi puissance sans écrouissage peut être obtenu en choisissant :

$$W(\varepsilon, \alpha) = \frac{1}{2}(\varepsilon - \alpha) : \mathbf{A} : (\varepsilon - \alpha), \quad \varphi(\dot{\alpha}) = \frac{\sigma_0 \dot{\varepsilon}_0}{m+1} \left(\frac{\dot{\alpha}_{\text{eq}}}{\dot{\varepsilon}_0} \right)^{m+1}, \quad (2.16)$$

où \mathbf{A} représente le tenseur d'élasticité et $\alpha = \varepsilon^{\text{vp}}$ la déformation viscoplastique.

Principe variationnel incrémental effectif

Considérons maintenant un volume élémentaire représentatif V constitué de phases dont le comportement est régi par les relations (2.14) et (2.15). Il est connu depuis longtemps (voir par exemple [Suq87]) que le caractère standard généralisé des lois considérées se conserve dans le changement d'échelles. Plus récemment, dans l'esprit des travaux de Mialon [Mia86], Ortiz et Stainier [OS99] et Miehe [Mie02], Lahellec et Suquet [LS07] ont établi que la réponse effective du composite pouvait être obtenue à partir de la donnée d'un unique potentiel incrémental effectif. De façon plus précise, après discrétisation en temps et supposant connu l'état des champs de variables internes α_n à l'instant t_n , la contrainte macroscopique $\bar{\sigma}$ à l'instant t_{n+1} est donnée par :

$$\bar{\sigma} = \frac{\partial \widetilde{W}_\Delta}{\partial \bar{\varepsilon}}(\bar{\varepsilon}), \quad (2.17)$$

où le potentiel effectif condensé $\widetilde{W}_\Delta(\bar{\varepsilon})$ est déterminé par la propriété variationnelle :

$$\widetilde{W}_\Delta(\bar{\varepsilon}) = \min_{\varepsilon \in \mathcal{K}(\bar{\varepsilon})} \min_{\alpha} \langle J(\varepsilon, \alpha) \rangle, \quad (2.18)$$

avec $\bar{\varepsilon}$ la déformation macroscopique à l'instant t_{n+1} , J le potentiel incrémental local défini par :

$$J(\varepsilon, \alpha) = W(\varepsilon, \alpha) + \Delta t \varphi \left(\frac{\alpha - \alpha_n}{\Delta t} \right), \quad (2.19)$$

et $\mathcal{K}(\bar{\varepsilon})$ l'ensemble des champs de déformation cinématiquement admissibles avec $\bar{\varepsilon}$:

$$\mathcal{K}(\bar{\varepsilon}) = \left\{ \varepsilon = \bar{\varepsilon} + \frac{1}{2}(\nabla \mathbf{u}^* + \nabla \mathbf{u}^{*T}), \mathbf{u}^* \text{ périodique sur } \partial V \right\}. \quad (2.20)$$

Variables réduites et potentiels effectifs

La relation condensée (2.17)-(2.18) montre que la description exacte de la réponse effective du composite nécessite la considération d'une infinité de variables internes, à savoir les champs locaux de variables internes $\alpha(\mathbf{x}, t)$ définis en tout point \mathbf{x} de V . Pour réduire ce nombre des hypothèses simplificatrices sont généralement considérées. Initialement proposée par Dvorak [Dvo92] pour des composites élastoplastiques puis étendue à des comportements plus complexes incluant l'endommagement (e.g. Kattan et Voyiadjis [KV93], Fish et Shek [FS99], Chaboche et al. [CKMP01]), l'analyse par champs de transformation (TFA) est une façon élégante de réduire ce nombre en considérant des champs de variables internes constants par phases ou par sous domaines. Son application aux composites biphasés montre néanmoins qu'une subdivision des phases en de nombreux sous domaines est absolument nécessaire si l'on veut décrire de façon satisfaisante la réponse globale du composite. La nécessité d'une telle subdivision provient de la forte non linéarité des lois constitutives considérées pouvant engendrer au sein d'une même phase des champs mécaniques très fortement hétérogènes. Basée sur ces observations, Michel et Suquet [MS03] ont proposé une décomposition des champs de variables internes sur un petit nombre de fonctions de forme non nécessairement uniformes appelées modes. Dans le présent contexte, la décomposition espace-temps proposée s'écrit :

$$\alpha(\mathbf{x}, t) = \sum_{k=1}^M \xi^{(k)}(t) \boldsymbol{\mu}^{(k)}(\mathbf{x}), \quad (2.21)$$

où les modes $\boldsymbol{\mu}^{(k)}(\mathbf{x})$ ont le même caractère tensoriel que les variables internes α , de sorte que les variables internes réduites $\xi^{(k)}$ sont des scalaires. Supposant les modes $\boldsymbol{\mu}^{(k)}(\mathbf{x})$ déterminés, la difficulté réside maintenant dans l'obtention des lois régissant l'évolution des variables internes réduites $\xi^{(k)}$. A

cette fin, Michel et Suquet [MS16] proposent d'utiliser le principe variationnel incrémental présenté au paragraphe précédent. Plus précisément, avec l'hypothèse (2.21), le potentiel effectif condensé (2.18) devient :

$$\widetilde{W}_{\Delta}^{\text{NTFA}}(\bar{\varepsilon}) = \min_{\xi} \widetilde{J}(\bar{\varepsilon}, \xi), \quad (2.22)$$

où

$$\widetilde{J}(\bar{\varepsilon}, \xi) = \widetilde{W}(\bar{\varepsilon}, \xi) + \Delta t \widetilde{\varphi} \left(\frac{\xi - \xi_n}{\Delta t} \right), \quad (2.23)$$

avec

$$\widetilde{W}(\bar{\varepsilon}, \xi) = \min_{\varepsilon \in \mathcal{K}(\bar{\varepsilon})} \langle W(\varepsilon, \alpha(\xi)) \rangle, \quad \widetilde{\varphi}(\dot{\xi}) = \langle \varphi(\dot{\alpha}(\dot{\xi})) \rangle, \quad (2.24)$$

et, en accord avec (2.17), la réponse effective NTFA du composite est définie par :

$$\bar{\sigma} = \frac{\partial \widetilde{W}_{\Delta}^{\text{NTFA}}}{\partial \bar{\varepsilon}}(\bar{\varepsilon}) = \frac{\partial \widetilde{W}}{\partial \bar{\varepsilon}}(\bar{\varepsilon}, \xi). \quad (2.25)$$

Notons que les équations d'Euler-Lagrange associées au problème de minimisation (2.22) s'écrivent :

$$\frac{\partial \widetilde{W}}{\partial \xi}(\bar{\varepsilon}, \xi) + \frac{\partial \widetilde{\varphi}}{\partial \dot{\xi}} \left(\frac{\xi - \xi_n}{\Delta t} \right) = 0, \quad (2.26)$$

et par suite quand Δt tend vers 0 :

$$\frac{\partial \widetilde{W}}{\partial \xi}(\bar{\varepsilon}, \xi) + \frac{\partial \widetilde{\varphi}}{\partial \dot{\xi}}(\dot{\xi}) = 0. \quad (2.27)$$

Introduisant les forces \mathbf{a} associées aux variables internes réduites ξ :

$$\mathbf{a} = - \frac{\partial \widetilde{W}}{\partial \xi}(\bar{\varepsilon}, \xi), \quad (2.28)$$

il vient d'après (2.27) que les forces \mathbf{a} sont liées à l'évolution des variables internes réduites par :

$$\mathbf{a} = \frac{\partial \widetilde{\varphi}}{\partial \dot{\xi}}(\dot{\xi}). \quad (2.29)$$

Comparant (2.25), (2.28) et (2.29) à (2.14) et (2.15), Michel et Suquet [MS16] remarquent que le modèle NTFA primal ainsi construit, préserve la structure standard généralisée des lois constitutives régies par deux potentiels.

Equations différentielles réduites

Lorsque le potentiel de dissipation des phases n'est pas quadratique, la résolution des équations différentielles effectives (2.27) nécessite le calcul de grandeurs locales telles que $\frac{\partial \varphi}{\partial \dot{\xi}}(x, \dot{\alpha}(x, \dot{\xi}))$ en tout point x de V avant de pouvoir en prendre leur moyenne. Michel et Suquet [MS16] montrent que cela ralentit considérablement l'intégration numérique de la loi de comportement homogénéisée et proposent pour cette raison de remplacer (2.27) par des équations différentielles réduites où tous les termes de moyenne peuvent être pré-calculés une fois pour toute. L'objectif n'est pas ici de rentrer dans le détail de la façon dont ces équations différentielles réduites sont obtenues ni de leur forme. Disons simplement que leur obtention fait appel, dans l'esprit des méthodes d'homogénéisation non linéaires à un seul potentiel (Willis [Wil89], Ponte Castañeda [PCN91], Ponte Castañeda et Suquet [CnS98], Ponte Castañeda [PCN96]), à des techniques de linéarisation qui consiste à réduire le problème initial avec potentiel de dissipation non quadratique à un problème de comparaison avec potentiel de dissipation quadratique dont le potentiel effectif associé peut être calculé explicitement.

Identification des modes

Les modes sont identifiés numériquement à partir de la résolution du problème local exact le long de différents trajets de chargement d'apprentissage. Il n'existe pas à l'heure actuelle de règles universelles concernant le choix de ces trajets de chargement. Leur choix dépend pour beaucoup du type de chargements utilisés dans l'application du modèle ainsi que de la non linéarité du comportement des constituants (Michel et Suquet [MS04], Largeton et al. [LMS14]). Les chargements d'apprentissage étant choisis, la procédure pour générer les modes, basée sur une méthode de décomposition orthogonale aux valeurs propres, est la suivante (Roussette et al. [RMS09], Michel et Suquet [MS09], Largeton et al. [LMS14]). Soient $\boldsymbol{\theta}^{(k)}(\boldsymbol{x})$, $k = 1, \dots, N$, les champs de variables internes déterminés à différents instants des différents trajets de chargement d'apprentissage en résolvant numériquement le problème local exact posé dans V , la matrice de corrélation

$$g_{ij} = \langle \boldsymbol{\theta}^{(i)}(\boldsymbol{x}) : \boldsymbol{\theta}^{(j)}(\boldsymbol{x}) \rangle, \quad (2.30)$$

est formée et ses valeurs propres $\lambda^{(k)}$ et vecteurs propres $\boldsymbol{v}^{(k)}$ sont calculés :

$$\sum_{j=1}^N g_{ij} v_j^{(k)} = \lambda^{(k)} v_i^{(k)}. \quad (2.31)$$

Les modes $\boldsymbol{\mu}^{(k)}(\boldsymbol{x})$ sont ensuite obtenus par :

$$\boldsymbol{\mu}^{(k)}(\boldsymbol{x}) = \sum_{i=1}^N v_i^{(k)} \boldsymbol{\theta}^{(i)}(\boldsymbol{x}). \quad (2.32)$$

Un intérêt tout particulier de la décomposition utilisée réside dans le fait que la quantité d'information contenue dans un vecteur propre $\boldsymbol{v}^{(k)}$ est donnée par la magnitude de sa valeur propre associée $\lambda^{(k)}$. Dit autrement, plus le rapport $\lambda^{(k)} / (\sum_{\ell=1}^N \lambda^{(\ell)})$ est proche de 1 plus le vecteur propre $\boldsymbol{v}^{(k)}$ associé à la valeur propre $\lambda^{(k)}$ contient d'informations issues des champs initiaux. Supposant les valeurs propres ordonnées de manière décroissante, $\lambda^{(1)} \geq \lambda^{(2)} \geq \dots \geq \lambda^{(N)}$, la propriété précédente est utilisée pour tronquer l'ensemble des modes $\boldsymbol{\mu}^{(k)}(\boldsymbol{x})$ aux M premiers modes de plus grandes valeurs propres. Seuls les M premiers modes prépondérants sont ainsi retenus.

2.5 Bilan du chapitre

Afin de développer un critère de rupture homogénéisé de la zone HBS de l' UO_2 , une modélisation par changement d'échelles a été proposée. Cette démarche se décompose en trois grandes étapes :

1. une étape de représentation : il s'agit de définir le milieu hétérogène. A ce stade, il faut préciser la constitution de cet ensemble : la liste des constituants, leur disposition, leur fraction volumique, les propriétés mécaniques à affecter. Cette démarche conduit à la définition d'un VER (si c'est possible, avec la notion de séparation d'échelles détaillée dans le paragraphe 2.2.1).
2. la localisation : cette étape permet de déterminer les champs locaux, c'est à dire au sein du VER, induits par un chargement à l'échelle macroscopique (zone HBS de la pastille combustible UO_2). Cette étape établit les relations de passage de l'échelle macroscopique à celle microscopique. Dans notre cas, il s'agit de déterminer les modes de fissuration, soit des champs scalaires, qui traduisent la fissuration du VER. Ce champ sera utilisé comme donnée d'entrée dans la méthode d'homogénéisation de la dernière étape de l'approche. Il pourra être établi à l'aide de modèle différent décrivant la mécanique de la rupture fragile. Bien que nous ayons choisi de réaliser cette étape avec le modèle DDIF2 dérivé d'une loi de zones cohésives, nous préférons adopter la formulation de l'approche variationnelle de la rupture, plus enclin à être homogénéisée.
3. l'homogénéisation : celle-ci consiste à synthétiser les résultats locaux précédents, obtenus au sein du VER, et à en déterminer la réponse moyenne. On établit, ainsi, les relations de passage de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique. Les propriétés effectives du VER, qui sont celles du MHE, constituent donc le résultat de cette étape d'homogénéisation. A la fin on obtient l'état de la zone HBS à l'échelle de la pastille, en utilisant l'information locale des champs de déformations, portée par les modes de fissuration obtenus lors de la localisation. Lors de cette étape, nous remarquerons que les équations du problème à homogénéiser possède la même structure variationnelle (un terme décrivant l'énergie élastique et un terme pour celui de l'énergie dissipée par la fissure) que dans la méthode NTFA appliquée aux constituants ayant un comportement standard généralisé. Le chapitre 6 décrit plus en détail ce développement.

La représentation constitue la première étape de notre approche et fait l'objet du prochain chapitre.

Chapitre 3

Représentation de la zone HBS du combustible UO_2

La représentation est la première étape de la méthode micro-mécanique. Elle a pour but de décrire géométriquement la microstructure du matériau et ce le plus fidèlement possible. L'objectif de ce chapitre est de présenter les données existantes dans la littérature, ainsi que les méthodes nécessaires pour représenter et discrétiser un milieu poreux, représentatif de la zone HBS du combustible UO_2 . Nous avons vu dans les chapitres précédents que la zone HBS de l' UO_2 est un matériau polycristallin avec des bulles intergranulaires. Cependant dans cette étude nous avons décidé de considérer que les bulles intergranulaires seraient noyées dans une matrice homogène et ce compte tenu du très petit diamètre moyen des grains (d'environ $0.1 \mu\text{m}$) devant le diamètre moyen des bulles HBS (d'environ $1 \mu\text{m}$).

Pour générer notre VER de la zone HBS nous avons besoin des informations suivantes :

- le **spectre diamétral** des bulles intergranulaires,
- la **fraction volumique** des bulles par classe diamétrale,
- et la **pression** dans ces bulles.

Pour obtenir ces informations deux approches complémentaires ont été utilisées et sont détaillées dans ce chapitre :

- **la simulation numérique.** Celle-ci nous permet de connaître numériquement l'évolution de la fraction volumique moyenne des bulles HBS, de leur volume moyen et leur pression moyenne avant accident et au cours d'un accident de type APRP, et plus précisément juste avant l'instant de fragmentation de la zone HBS : instant d'intérêt pour la suite de notre étude. Cette approche est décrite dans la première partie de ce chapitre.
- **l'approche expérimentale.** Celle-ci permet de caractériser avant accident de type APRP différents combustibles irradiés à différents taux d'irradiation et possédant en périphérie de combustible la zone d'intérêt pour notre étude, à savoir la zone HBS. Plusieurs méthodes expérimentales complémentaires sont utilisées pour déterminer le spectre diamétral des bulles HBS, la fraction volumique des bulles HBS par classe diamétrale et la pression moyenne dans ces bulles. L'ensemble de ces méthodes et résultats sont décrits dans la seconde partie de ce chapitre. Ces caractérisations expérimentales de la zone HBS sur combustibles irradiés avant accident de type APRP sont de plus confrontées aux simulations numériques de la partie précédente. Dans cette partie nous nous limitons à la caractérisation expérimentale avant accident car lors d'un essai expérimental représentatif de l'APRP, il est aujourd'hui impossible de caractériser expérimentalement la zone HBS du combustible et son évolution microstructurale au cours de l'essai. De plus, après essai l'état microstructural de cette zone n'est plus d'intérêt car elle est totalement endommagée et fissurée.

Les parties 1 et 2 de ce chapitre nous permettent donc d'obtenir les informations nécessaires (spectre diamétral des bulles HBS, fraction volumique des bulles par classe diamétrale et la pression dans ces bulles) pour générer des VER de la zone HBS de l'UO₂. Dans la partie 3 de ce chapitre nous présentons les outils utilisés pour générer géométriquement et valider la représentativité de ces VER. Plusieurs VER de différentes microstructures de la zone HBS ont été étudiés et ce dans l'objectif d'alimenter les études de localisations exposées dans les chapitres suivants et de réaliser des études de sensibilité à la microstructure.

3.1 Approche numérique

3.1.1 Présentation des outils numériques : ALCYONE - CARACAS

Pour alimenter notre représentation, nous avons utilisé un code de simulation du comportement thermomécanique du crayon combustible développé par le CEA, ALCYONE V1.4 [MGS⁺14]. Ce code multidimensionnel de la plate-forme logiciel PLEIADES permet la modélisation en réacteur du comportement du crayon combustible REP, que ce soit en conditions de fonctionnement normal (irradiation de base), conditions incidentelles (rampes et transitoires de puissance), et conditions accidentelles (APRP, RIA). Ce code est décrit succinctement dans la partie suivante 3.1.1.1. Il est possible d'activer dans ALCYONE un modèle « point matériel » de comportement de gaz de fission avancé CARACAS [JSB⁺14] des zones radiales non restructurées et restructurées (zone HBS) de la pastille. Nous détaillerons ce modèle dans la partie 3.1.1.2.

3.1.1.1 ALCYONE code de simulation du comportement thermomécanique du crayon combustible

La modélisation sous ALCYONE propose une simulation de l'ensemble du crayon combustible en 1, 2 ou 3D. Dans cette partie nous ne décrivons succinctement que la partie 1D d'ALCYONE car à ce jour il est impossible de réaliser des études de type APRP avec ALCYONE 2D ou 3D. Ces fonctionnalités ne sont opérationnelles qu'en conditions de fonctionnement normal et incidentelles (transitoires de classe 1 ou 2 : rampe de puissance ...) mais pas en conditions accidentelles (transitoires de classe 4 : APRP, RIA ...). La représentation numérique 1D d'ALCYONE est composée d'une colonne de pastilles combustibles et d'une gaine en vis-à-vis. La discrétisation axiale du crayon est réalisée à partir de tranches, équidistantes ou non, qui représentent ce qui se passe en moyenne sur plusieurs pastilles (voir figure 3.1).

On note les hypothèses suivantes :

- le crayon combustible possède une symétrie de révolution ce qui conduit à utiliser une description 1D axisymétrique du milieu continu composé de la pastille et de la gaine.
- dans la direction axiale du crayon, ce dernier est modélisé en déformations planes généralisées ou en contraintes planes généralisées. Puisque nous sommes en 1D axisymétrique, il n'y a qu'un seul degré de liberté : la déformation axiale (qui doit être la même pour tous les points dans le cadre des déformations planes généralisées) :

$$\mathbf{u}(r, \theta, z) \approx u(r)\mathbf{e}_r + \varepsilon_{zz}.z\mathbf{e}_z, \quad (3.1)$$

où le déplacement u , est exprimé en fonction du rayon r , de l'angle azimutal θ , et la coordonnée axiale z considérés dans le crayon combustible, dans la base principale de crayon combustible ($\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e}_z$). L'ensemble de ces hypothèses conduisent à représenter la tranche axiale du crayon combustible par deux segments de droites : un pour la pastille combustible et un pour la gaine. Quand le jeu est ouvert, nous avons également un segment supplémentaire entre la pastille et la gaine. Le contact entre la pastille et la gaine est traité par une condition de non-interpénétration ce qui signifie que le rayon

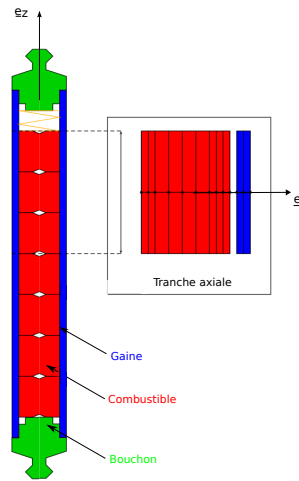


FIGURE 3.1 – Discrétisation axiale en tranche du crayon dans une représentation 1D d’ALCYONE, incluant la pastille, la gaine et le jeu.

externe de la pastille combustible est toujours inférieur ou égal au rayon interne de la gaine. Lorsqu’il y a contact entre la pastille et la gaine, on suppose qu’il y a une forte interaction entre le reste de la colonne combustible frottant sur la gaine et la tranche de pastille courante. Pour modéliser cette interaction, on impose une condition dite de solidarisation traduisant le fait que la pastille et la gaine ont dorénavant le même déplacement axial. Cette interaction montre qu’en l’absence de contact entre la pastille et la gaine, les degrés de liberté des deux plans sont indépendants ce qui traduit le fait que les efforts transmis au reste de la colonne combustible ne sont pas repris par la gaine. Lorsque le jeu entre la pastille et la gaine est fermé, la condition cinématique correspond à une solidarisation des deux plans traduisant un encastrement dû au frottement de la colonne combustible sur la gaine.

A partir de la représentation mono-dimensionnelle présentée, il est possible de représenter un crayon sur toute sa hauteur. En effet, le crayon combustible peut se découper en plusieurs tranches axiales qui auront une puissance linéique différente entre elles. D’un point de vue mécanique, ces tranches axiales sont couplées par le bilan axial des forces (poids des tranches se trouvant au-dessus, effet de la pression interne du crayon ou effet de la condition de solidarisation des tranches voisines). Pour parler de cette possibilité de décrire les phénomènes intervenant à différentes cotes axiales, il est d’usage de parler de modélisation $1D_{1/2}$. Le recours à cette représentation numérique dans le code, permet d’accélérer les temps de calcul.

Dans la direction radiale, la discrétisation se fait selon un segment pour le combustible et d’un autre pour la gaine, avec un espace entre les deux, constituant le jeu pastille-gaine. Le nombre total d’éléments 1D est à fournir, ainsi que le nombre d’éléments du combustible. Pour la discrétisation de ces maillages, deux choix sont possibles : soit le découpage est réalisé par une suite géométrique pour laquelle on fournit la raison, soit l’utilisateur donne les rayons de tous les nœuds des deux maillages. Un exemple est donné sur l’image 3.2. La discrétisation usuelle dans cette direction est de 46 éléments : 41 pour la pastille et 5 éléments pour la gaine.

ALCYONE V1.4 modélise via des modèles plus ou moins élaborés l’ensemble des phénomènes subis par le crayon combustible au cours de sa vie en REP en fonctionnement normal et également lors d’un accident de type APRP. Parmi les nombreux modèles intégrés dans ALCYONE V1.4, nous y trouvons un modèle de gaz de fission (Xénon/Krypton) avancé nommé CARACAS. Nous nous focalisons sur ce modèle car celui-ci peut nous fournir l’évolution microstructurale de la zone HBS (fraction volumique moyenne des bulles HBS, diamètre moyen des bulles HBS et pression moyenne dans ces bulles) du

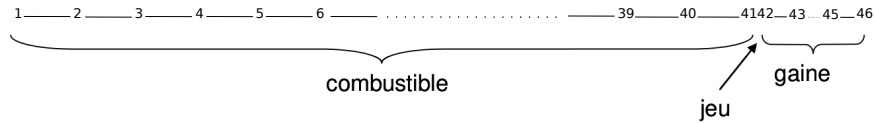


FIGURE 3.2 – Discrétisation radiale 1D sous ALCYONE.

combustible au cours de l’irradiation du crayon combustible en fonctionnement normal, puis durant un accident de type APRP. Ce modèle est décrit succinctement dans la partie suivante 3.1.1.2.

3.1.1.2 CARACAS : modèle de gaz avancé

CARACAS est un modèle local avancé du comportement des gaz de fission (Xénon/Krypton : Xe/Kr). On parle de modèle « point » vis à vis du code cible dans lequel il est implanté (ici dans ALCYONE). C’est-à-dire qu’en chaque point du maillage du code cible, CARACAS reçoit certaines informations (température, taux de fission,...) et en renvoie d’autres (relâchement, gonflement, taux de restructuration HBS,...) concernant ce point macroscopique. CARACAS fournit aussi, en chaque point macroscopique traité par le code cible, une caractérisation fine de la situation des gaz de fission Xe/Kr. Pour pouvoir décrire cette caractérisation fine des gaz de fission, on passe dans CARACAS à une échelle inférieure, typiquement celle du grain moyen et du joint de grain moyen. Ces derniers étant dans les conditions de température, taux de fission,... du point macroscopique considéré.

A cette échelle, le modèle décrit le transfert des gaz de fission (Xe/Kr dissous, piégés dans les bulles ou les pores...) de l’intragranulaire vers l’intergranulaire puis vers les volumes libres du crayon en conditions de fonctionnement normal, incidentelles et accidentelles, aussi bien dans les zones saines de la pastille, en cours de restructuration ou restructurées (zone HBS). La figure 3.3 représente la modélisation complète et idéale du grain dans une zone saine de la pastille. Lors de leurs apparitions en intragranulaire les gaz de fission Xe/Kr peuvent être dissous dans le réseau cristallin, piégés dans les pores intragranulaires de fabrication, nucléer sous formes de bulles intragranulaires ou diffuser athermiquement (effets balistiques ou reculs dus aux pointes de fission) et thermiquement jusqu’aux joints de grain. Aux joints de grain, ces gaz peuvent être dissous, piégés dans les pores intergranulaires, nucléer sous forme de bulles intergranulaires ou relâchés dans les volumes libres du crayon via une porosité ouverte et/ou fissure localisée. Ces fissures et/ou porosités ouvertes sont modélisées par une surface libre (couleur verte sur la figure 3.3). Les populations du Xe/Kr, exposées sur la figure 3.3 (Xe/Kr dissous dans le réseau cristallin, piégés dans les bulles intra ou intergranulaires ou dans les pores intergranulaires), et leurs évolutions (nucléations, croissance, coalescence) sont modélisés intégralement dans CARACAS pour un grain se trouvant dans une zone saine de la pastille. Cependant, les pores intragranulaires ne sont pas modélisés et ce compte tenu de leur faible fraction volumique. De plus, lorsque les gaz arrivent par diffusion aux joints de grains, nous considérons dans CARACAS qu’ils se retrouvent directement dans une nanobulle. Nous ne modélisons donc pas les gaz dissous en intergranulaire dans CARACAS.

Comme nous l’avons vu dans les chapitres précédents, certaines zones de la pastille peuvent subir une restructuration de type HBS (zone apparaissant en périphérie de la pastille pour le combustible UO_2 et à fort taux de combustion). Le passage de l’état en restructuration du grain à l’état entièrement restructuré est exposé sur les figures 3.4a et 3.4b. Ces figures représentent une modélisation complète et idéale. Dans CARACAS, plusieurs simplifications sont réalisées. Ces simplifications seront détaillées et exposées dans le point C de cette partie 3.1.1.2.

Dans notre cas d’étude, nous nous intéressons uniquement aux zones entièrement restructurées de la pastille UO_2 (zone HBS) 3.4.b. De surcroît dans cette partie nous ne décrivons que les équations constitutives de cette zone. Nous renvoyons le lecteur à [JSB⁺14] pour de plus amples informations

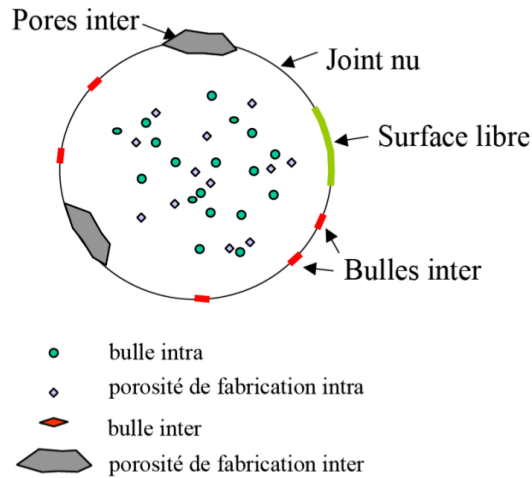


FIGURE 3.3 – Représentation d’un grain non restructuré dans CARACAS (représentation par une sphère équivalente).

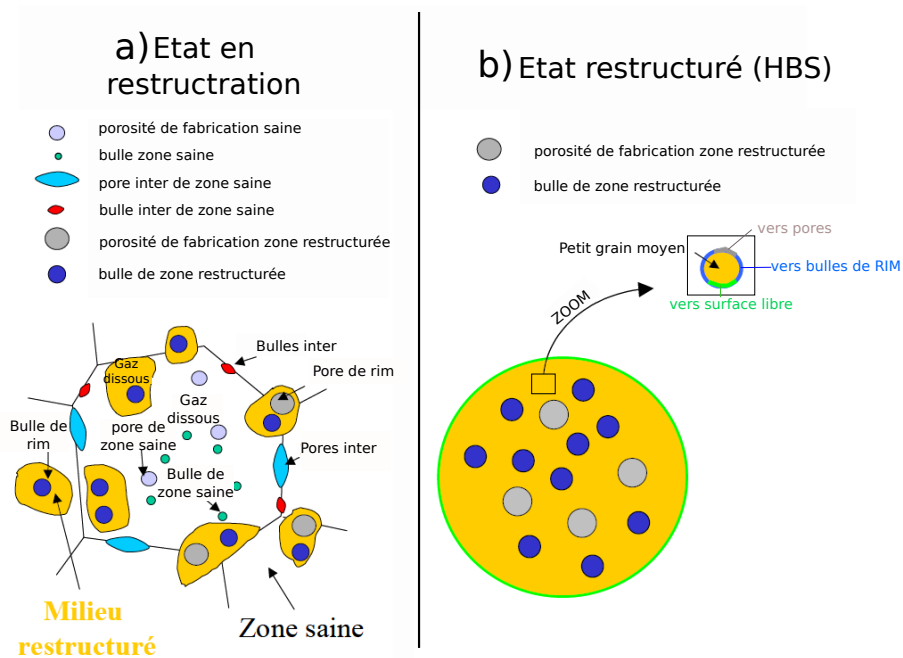


FIGURE 3.4 – a. Modélisation des états en restructuration et b. restructuré dans CARACAS [JSB⁺14] (Dans CARACAS, les pores intragranulaires ne sont pas représentés et les gaz dissous sont uniquement localisés en intragranulaire).

sur les équations constitutives des autres zones. Dans cette partie et plus précisément dans le point B, nous soulignons les équations et les variables qui sont d’intérêts pour alimenter en données d’entrée la représentation géométrique de notre microstructure (VER de la zone HBS), à savoir celles qui définissent :

- la fraction volumique moyenne des bulles HBS,
- le diamètre moyen des bulles HBS,
- et la pression moyenne dans ces bulles.

Le critère de passage de l'état en restructuration à l'état entièrement restructuré est d'abord détaillé dans le point A de cette partie 3.1.1.2

A. Critère de passage de l'état en restructuration à l'état entièrement restructuré

Les principales hypothèses retenues pour calculer l'extension de la restructuration dans la pastille sont les suivantes :

- Au cours de l'irradiation d'un combustible, des poches de restructuration apparaissent progressivement parmi des zones encore non restructurées (dites zones saines). Le modèle devra rendre compte de cet effet en calculant une fraction locale de zone restructurée variant de 0 à 100 %.
- L'apparition de la restructuration est dépendante du niveau local d'endommagement du matériau qui est lié à la valeur de la densité locale de dislocations; celles-ci constituera donc le paramètre principal du modèle.

La modélisation proposée est du type semi-empirique. Elle se base sur des mesures MET de densités de dislocations effectuées dans des zones périphériques « froides » de pastilles d' UO_2 (température locale d'environ 400 °C) irradiées localement à très fort taux de combustion (environ 100 GWj/tM) [NU95]. Dans un second temps, afin d'obtenir un modèle applicable dans les zones centrales chaudes de la pastille, un modèle cinétique de recuit des défauts a été introduit. Originellement, Nogita et Une proposent une loi permettant de calculer la densité de dislocations en fonction du burnup, qui s'écrit selon l'expression :

$$\log_{10}(\rho_d) = 2,2 \cdot 10^{-2} bu_G + 13,8, \quad (3.2)$$

avec :

- ρ_d : densité de dislocations en $m.m^{-3}$.
- bu_G : taux de combustion local en GWj/tM.

En différenciant l'équation précédente par rapport au temps, on obtient le premier terme d'évolution de ρ_d correspondant à la création des dislocations sous flux (terme athermique) :

$$\frac{d\rho_d}{dt} = \ln(10) 2,2 \cdot 10^{-2} bu'_G \rho_d = \alpha \cdot \rho_d \quad (3.3)$$

avec $\alpha = \ln(10) 2,2 \cdot 10^{-2} bu'_G$ en s^{-1} .

Dans cette expression, le terme bu'_G représente la dérivée en fonction du temps du burnup, en GWj/(tM.s). Ce terme peut se calculer selon l'équation $bu'_G = \frac{P_V}{\rho_{ox}} 1,313 \cdot 10^{-11}$ où :

- P_V est la puissance volumique locale en $W.m^{-3}$ de combustible vierge.
- ρ_{ox} est la masse volumique initiale du combustible (oxyde) en $kg.m^{-3}$.

Concernant maintenant le modèle de recuit des défauts, la modélisation retenue est basée sur trois hypothèses :

- à haute température (i.e. très supérieure à une température seuil), les défauts seront recuits selon une cinétique contrôlée par un temps caractéristique de recuit noté τ_{ann} (avec 'ann' pour anneal),
- A basse température, l'évolution de la densité de dislocation devra tendre vers l'approche athermique de Nogita et Une [NU95],
- pour les températures intermédiaires, une transition continue entre les deux régimes sera considérée.

Ces fonctionnalités peuvent être obtenues par une expression de la forme suivante pour le terme de recuit des défauts :

$$\frac{d\rho_d}{dt} = -\frac{f(T)}{\tau_{ann}}\rho_d \quad (3.4)$$

où

— $f(T) \rightarrow 0$, si $T \ll T_{thres}$ (avec 'thres' pour threshold).

— $f(T) \rightarrow 1$ si $T \gg T_{thres}$.

Un type de fonction répondant à ces exigences est :

$$f(T) = (1 + \exp(-(T - T_{thres})/\Delta(T)))^{-1}. \quad (3.5)$$

L'équation d'évolution complète de ρ_d s'écrit alors de manière synthétique :

$$\frac{d\rho_d}{dt} = (\alpha - \frac{f(T)}{\tau_{ann}}).\rho_d. \quad (3.6)$$

Il est considéré que le modèle présenté précédemment permet en effet de calculer une densité moyenne qui sera notée ρ_{dm} et qu'il existe une distribution autour de cette valeur. En retenant une distribution log-normal, la probabilité d'avoir une densité de dislocations comprises entre ρ_d et $\rho_d + d\rho_d$ s'écrit $p(\rho_d)d\rho_d$ avec :

$$p(\rho_d) = \frac{1}{\rho_d\sigma_d\sqrt{2\pi}}\exp\left(-\frac{(\ln(\rho_d) - \ln(\rho_{dm}))^2}{2\sigma_d^2}\right). \quad (3.7)$$

En considérant que le combustible est restructuré au delà d'une densité de dislocations seuil (notée ρ_{ds}), l'expression permettant de calculer la fraction volumique de combustible restructuré s'écrit :

$$F_r = \int_{\rho_{ds}}^{+\infty} p(\rho_d)d\rho_d = \frac{1}{2}\text{Erfc}\left(\frac{\ln(\rho_{ds}) - \ln(\rho_{dm})}{\sqrt{2}\sigma_d}\right). \quad (3.8)$$

Des estimations de valeurs numériques des paramètres intervenant dans les équations ont été obtenues en se servant du retour d'expériences de l'utilisation des autres modèles de comportement des gaz de fission du CEA, ainsi que des interprétations expérimentales disponibles ayant servies à caractériser le développement de la restructuration dans des combustibles irradiés. Les valeurs numériques des paramètres disponibles à ce jour sont les suivantes :

1. La température de recuit des défauts dépend du type de combustible considéré. Actuellement, dans les modèles, on utilise une valeur de 770 °C pour l'UO₂.
2. La transition de régime pour le recuit des défauts se produit sur un intervalle de température d'environ 30 °C, obtenu pour une valeur de $\Delta T = 5$ °C dans la fonction $f(T)$ (cf. figure 3.5).
3. Le temps caractéristique du recuit des défauts (τ_{ann}) a été fixé à 110 h.
4. Une valeur de densité de dislocation seuil (ρ_{ds}) de $3,6.10^{15} m.m^{-3}$ permet de trouver une bonne adéquation du modèle avec les résultats expérimentaux issus de la synthèse HBS pour le combustible UO₂ [LB09]. Les résultats du modèle comparés aux mesures expérimentales (voir page 109 [LB09]) sont fournies sur la figure 3.6.

En résumé, l'utilisation d'une telle approche se fait dans CARACAS selon les étapes décrites ci-dessous :

1. Les conditions initiales sur la densité de dislocation et sur la fraction volumique de zone restructurée sont fixées aux valeurs suivantes : $\rho_d^0 = 6,31.10^{13} m.m^{-3}$ et $F_r^0 = 0$.
2. En chaque point du maillage du code cible, est calculé le coefficient α_{tot} défini par :

$$\alpha_{tot} = \alpha - \frac{f(T)}{\tau_{ann}}. \quad (3.9)$$

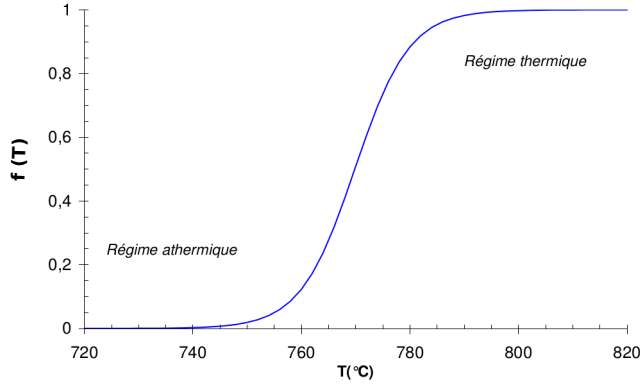


FIGURE 3.5 – Transition entre les régimes thermiques et athermiques dans le traitement des dislocations pour le combustible UO_2 [JSB⁺14]

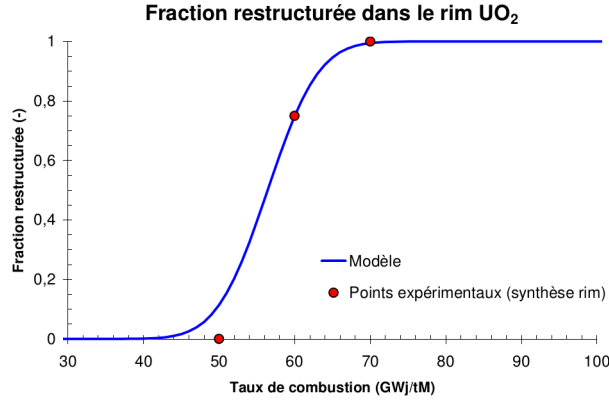


FIGURE 3.6 – Évolution de la fraction volumique de combustible restructuré dans le combustible UO_2 Comparaison calculs expériences.

3. Puis, l'évolution de ρ_{dm} est calculée sur le pas de temps selon l'expression suivante (dans laquelle ρ_{dm}^* et t^* représentent respectivement les valeurs de densités de dislocations et du temps en début de pas de temps) :

$$\rho_{dm} = \rho_{dm}^* \exp(\alpha_{tot}(t - t^*)).$$

4. La densité de dislocations calculée à l'étape précédente est utilisée pour obtenir l'équation d'évolution de la fraction restructurée. Cette évolution s'obtient en dérivant par rapport au temps l'expression de F_r exposée précédemment :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{1}{2} \operatorname{erfc} \left(\frac{\ln(\rho_{ds}) - \ln(\rho_{dm})}{\sqrt{2}\sigma_d} \right) \right). \quad (3.10)$$

Dans cette expression, seul ρ_{dm} dépend du temps. Par ailleurs,

$$\operatorname{erfc}(x) = 1 - \operatorname{erf}(x), \text{ avec, } \operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-u^2) du. \quad (3.11)$$

Nous avons donc :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{1}{2} \operatorname{erfc}(x) \right) = -\frac{1}{2} \frac{d}{dt} (\operatorname{erf}(x)) = -\frac{1}{2} \frac{dx}{dt} \frac{d}{dx} (\operatorname{erf}(x)) = -\frac{1}{2} \frac{dx}{dt} \frac{2}{\sqrt{\pi}} \exp(-x^2); \quad (3.12)$$

avec

$$x = \frac{\ln(\rho_{ds}) - \ln(\rho_{dm})}{\sqrt{2}\sigma_d} \text{ soit } \frac{dx}{dt} = -\frac{1}{\sqrt{2}\sigma_d} \frac{d}{dt}(\rho_{dm}) \Big/ \rho_{dm}. \quad (3.13)$$

En insérant l'équation d'évolution complète de ρ_d exposée précédemment dans la relation précédente, nous obtenons au final :

$$\frac{dF_r}{dt} = \frac{\alpha_{tot}}{\sqrt{2\pi}\sigma_d} \exp\left(-\left[\frac{\ln(\rho_{ds}) - \ln(\rho_{dm})}{\sqrt{2}\sigma_d}\right]^2\right). \quad (3.14)$$

Comme la fraction restructurée ne peut que s'incrémenter par rapport à la valeur précédente (i.e. « effet cliquet », sur l'extension de la zone non restructurée), $\frac{dF_r}{dt} \geq 0$ dans l'algorithme de résolution).

Finalement dans CARACAS, il n'a pas été choisi de borne basse de la fraction restructurée. A chaque pas de temps les équations d'évolution des gaz de fission (Xe/Kr) sont donc résolus dans la zone saine et restructurée. Par contre, une borne haute a été introduite ($F_{r_{max}} = 99\%$), au dessus de laquelle il est considéré que le combustible est totalement restructuré localement et ce afin de s'affranchir d'éventuels problèmes numériques.

Dans notre cas d'étude nous nous intéressons uniquement au cas des zones entièrement restructurées de la pastille c'est à dire lorsque $F_r = 100\%$. Les équations d'évolutions des gaz de fission (Xe/Kr) dans ces zones sont donc exposées dans la partie suivante.

B. Équations d'évolution des gaz de fission dans la zone HBS

Dans cette partie, nous nous focalisons uniquement sur les équations d'évolutions des gaz de fission (Xe/Kr) dans la zone HBS et les variables qui sont d'intérêt pour alimenter en données d'entrée la représentation géométrique de notre microstructure (VER de la zone HBS) à savoir celles qui définissent :

1. la fraction volumique des bulles HBS,
2. le diamètre moyen des bulles HBS,

L'évaluation de la pression moyenne dans les bulles HBS sera exposée dans le point C. Dans le cas d'une zone en restructuration, il faudrait ajouter des termes fonction de la fraction volumique du combustible restructuré (F_r). Lors de la restructuration complète la variable F_r est égale à 1 et $\frac{dF_r}{dt}$ vaut 0 : cela correspond à notre cas d'étude.

Dans ces travaux, deux populations seront prises en compte dans la zone restructurée : le gaz dissous dans le fragment et les bulles HBS. Les variables seront indicées par l'acronyme « hbs » pour High Burn Up structure (par abus de langage nous utiliserons également le mot « rim »). Le gaz dissous intragranulaire dans la zone restructurée est uniquement alimenté par le gaz dissous intragranulaire de la zone saine qui se restructure. Le gaz des bulles HBS est alimenté par l'ensemble du gaz piégé dans les bulles intra et inter granulaires de la zone saine qui se restructure, ainsi que des pores intergranulaires de la zone saine (rappel : les pores intragranulaires et le gaz dissous en intergranulaires ne sont pas modélisés dans CARACAS). Pour notre étude, la correspondance entre les variables représentant le gaz dans les zones saines et restructurées est donnée dans le schéma suivant :

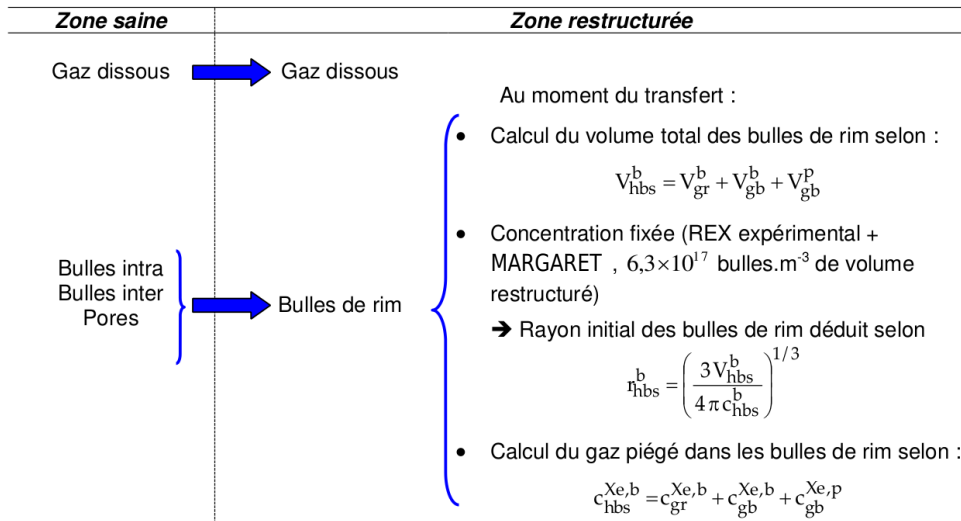


FIGURE 3.7 – Procédure d’initialisation des variables caractéristiques de la zone restructurée. Les valeurs de MARGARET sont données par [Noi05] et [Noi11]

avec :

Variables	Descriptions de la grandeur	Unités
V_{gb}^b	Volume des bulles intergranulaires fermées par unité de volume du fragment de combustible vierge	(-)
V_{gr}^b	Volume des bulles intragranulaires par unité de volume du fragment de combustible vierge	(-)
V_{gb}^p	Volume des pores intergranulaires (pores de fabrication et lorsqu’elles existent bulles intergranulaires connectées aux pores), par unité de volume du fragment de combustible vierge	(-)
V_{hbs}^b	Volume des bulles de rim par unité de volume du fragment combustible vierge	(-)
r_{hbs}^b	Rayon des bulles de rim	m
C_{hbs}^b	Concentration en bulles de rim par unité de volume du fragment de combustible vierge	bulles.m ⁻³
$C_{hbs}^{Xe,b}$	Concentration en xénon piégé dans les bulles de rim par unité de volume du fragment de combustible vierge	at.m ⁻³
$C_{gr}^{Xe,b}$	Concentration en xénon piégé dans les bulles intragranulaires par unité de volume du fragment de combustible vierge	at./m ⁻³ .
$C_{gb}^{Xe,b}$	Concentration en xénon dans les bulles intergranulaires par unité de volume du fragment combustible vierge	at.m ⁻³
$C_{gb}^{Xe,p}$	Concentration en xénon dans les pores intergranulaires par unité de volume du fragment combustible vierge	at.m ⁻³

La représentation du combustible, exposée précédemment pour les zones dites saines (cf figure 3.3 : grain modélisé par une sphère équivalente), ne s’applique plus dans la zone restructurée du combustible et par conséquent pour notre cas d’étude.

Pour représenter physiquement les mécanismes activés dans la zone HBS, un changement d’échelle de représentation est introduit, induit par deux effets principaux : la subdivision des grains et le

développement d'une porosité micrométrique (porosité signifiant par abus de langage bulle HBS). Les grains restructurés ont une taille réduite d'un facteur d'environ 30 à 50. En considérant à titre d'exemple une taille initiale de $8 \mu\text{m}$, le diamètre des grains restructurés est de l'ordre de 0.2 à $0.3 \mu\text{m}$. Un grain initial donne alors naissance à plus de 30 000 nouveaux grains. Les effets surfaciques deviendront significatifs avec la multiplication des joints de grain dans lequel nous considérons que du gaz dissous peut diffuser facilement et à longue distance (c'est à dire à l'échelle du fragment). Le terme significatif est employé pour signifier que les effets surfaciques par rapport aux effets volumiques sont contrôlés par le rapport $\frac{S}{V} = \frac{3}{R_{gr}}$, avec S la surface, V le volume et R_{gr} le rayon du grain. Dans le même temps, une importante porosité micrométrique se développe, avec des tailles de bulles de 1 à $2 \mu\text{m}$ et des fractions volumiques supérieures à 10 %, ce qui entraîne un gonflement du matériau.

Dans la zone restructurée, les équations seront donc traitées à l'échelle du fragment de combustible homogénéisé. Les variables volumiques apparaissant dans les équations du modèle, présentées ci-dessous, seront donc définies par rapport à l'unité de volume du fragment de combustible vierge.

Lorsque le combustible est complètement restructuré ($F_r = 1, \frac{dF_r}{dt} = 0$), l'équation du gaz dissous dans le fragment de la zone HBS se traduit par

$$\frac{\partial c_{hbs}^{Xe}(r, t)}{\partial t} = D_{hbs}^{Xe} \Delta c_{hbs}^{Xe}(r, t) + \beta_{hbs}^{Xe}(t) - g_{hbs} c_{hbs}^{Xe}(r, t), \quad (3.15)$$

Avec les paramètres de la table suivante :

Variabes	Descriptions de la grandeur	Unités
C_{hbs}^{Xe}	Concentration de xénon dissous dans le fragment par unité de volume du fragment de combustible vierge, avec une dépendance en fonction de la position radiale dans le fragment et du temps.	at.m^{-3}
D_{hbs}^{Xe}	Coefficient de diffusion atomique du xénon dissous dans le fragment de combustible dans la zone restructurée ($D_{hbs}^{Xe} = \alpha_{hbs} \cdot D_{gr}^{Xe}$)	$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
D_{gb}^{Xe}	Coefficient de diffusion atomique du xénon dissous dans le grain avec $D_{gr}^{Xe}(T_k, F) = D_{gr}^{Xe,1}(T_k) + 4D_{gr}^{Xe,2}(T_k, F) + 4D_{gr}^{Xe,3}(F)$ (le formalisme de la loi et son paramétrage sont décrits en annexe B)	$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
$D_{gr}^{Xe,1}$	Contribution thermique au coefficient de diffusion atomique du xénon dissous dans le grain	$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
$D_{gr}^{Xe,2}$	Contribution mixte en température et densité de fission au coefficient de diffusion atomique du xénon dissous dans le grain (à noter le facteur 4 introduit par Turnbull après une ré-interprétation des premiers résultats expérimentaux).	$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
$D_{gr}^{Xe,3}$	Contribution athermique au coefficient de fission atomique du xénon dissous dans le grain (à noter le facteur 4 introduit par Turnbull après une ré-interprétation des premiers résultats expérimentaux)	$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
F	Densité de fission exprimée par rapport au volume du fragment de combustible vierge	$\text{fissions} \cdot \text{m}^{-3}$
T, T_k	Température	$^{\circ} \text{K}$
α_{hbs}^d	Coefficient de proportionnalité entre le coefficient de diffusion du gaz dans le grain dans la zone saine et celui	(-)

	utilisé dans le fragment de la zone restructurée	
β_{hbs}^{Xe}	Terme source de production des gaz de fission dans le fragment combustible	at.m ³
g_{hbs}	Fréquence de piégeage du gaz dissous dans les bulles de rim prise en compte dans la zone restructurée	s ⁻¹

L'équation d'évolution de la concentration en gaz piégé dans les bulles HBS a, quant à elle, la forme suivante lorsque la zone est totalement restructurée ($F_r = 1$ et $\frac{dF_r}{dt} = 0$) :

$$\frac{dc_{hbs}^{Xe,b}(t)}{dt} = g_{hbs}\overline{c_{hbs}^{Xe}}(t) - b_{hbs}c_{hbs}^{Xe,b}(t), \quad (3.16)$$

avec :

Variabes	Descriptions de la grandeur	Unités
$C_{hbs}^{Xe,b}$	Concentration de xénon piégé dans les bulles de rim par unité de volume du fragment de combustible vierge	at.m ⁻³
b_{hbs}	Fréquence de remise en solution dans le grain du gaz piégé dans les bulles de rim	s ⁻¹
$\overline{C_{hbs}^{Xe}}$	Concentration moyenne en xénon dissous dans le fragment par unité de volume du fragment de combustible vierge ne dépendant que du temps	at.m ⁻³

Cette équation permet de prendre en compte les mécanismes de piégeage dans les bulles HBS et de remise en solution du gaz piégé dans le fragment. Dans notre cas d'étude et avec cette version du modèle (NB : la concentration représente le nombre de bulle par unité de volume du combustible restructuré et à l'échelle globale la concentration en bulle de rim est donnée par $F_r \cdot c_{hbs}^b$), la concentration en bulles de rim (c_{hbs}^b) sera considérée comme constante (rappel : concentration fixée à $6,3 \cdot 10^{17}$ bulles/m³). Cette hypothèse simplificatrice est justifiée tant que le mécanisme de coalescence des bulles de rim reste du second ordre.

Enfin l'évolution du volume des bulles HBS est définie, lorsque la zone est totalement restructurée ($F_r = 1$ et $\frac{dF_r}{dt} = 0$) par l'équation suivante :

$$\frac{dV_{hbs}^b(t)}{dt} = \Omega g_{hbs}\overline{c_{hbs}^{Xe}} - \Omega b_{hbs}c_{hbs}^{Xe,b} + \frac{4\pi r_{hbs}^b c_{hbs}^b D_{hbs}^u}{1 + \frac{2R_{f,hbs}}{3} \sqrt{\pi r_{hbs}^b c_{hbs}^b}} \Delta_{exp}(P_{hydro}, P_{hbs}^b - \frac{2\gamma}{r_{hbs}^b}), \quad (3.17)$$

Avec :

Variabes	Descriptions de la grandeur	Unités
V_{hbs}^b	Volume des bulles de rim par unité de volume du fragment de combustible vierge	(-)
Ω	Volume de la trilacune dans l' UO_2	m ³
r_{hbs}^b	Rayon des bulles de rim	m
c_{hbs}^b	Concentration de bulles de rim par unité de volume du fragment de combustible vierge	bulles.m ⁻³
D_{hbs}^u	Coefficient d'auto diffusion de l'uranium dans le fragment de combustible restructuré	m ² .s ⁻¹
R_f	Rayon moyen du fragment de combustible de rim (sphère équivalente)	m

P_{hydro}	Pression hydrostatique dans le combustible	Pa
P_{hbs}^b	Pression du gaz dans les bulles de rim	Pa
γ	Tension de surface UO_2 /gaz de fission	$J.m^{-2}$

Dans cette équation, il est considéré que le piégeage d'un atome de gaz amène le volume de la trilacune (Ω) à la bulle de rim, et inversement, la remise en solution d'un atome de gaz piégé retire un volume Ω à la bulle. La démarche ayant permis d'obtenir l'expression du terme d'évolution du volume des bulles de rim dû au déséquilibre entre la pression instantanée du gaz et sa pression d'équilibre (en tenant compte de la pression hydrostatique et du terme de tension superficielle) est donnée dans l'annexe C. Dans ce terme apparaît au dénominateur le rayon du fragment de combustible restructuré, ainsi qu'une différence d'exponentielles qui s'écrit selon :

$$\Delta_{exp}\left(P_{hydro}, -P_{hbs}^b \frac{2\gamma}{r_{hbs}^b}\right) = exp\left(-\frac{P_{hydro}\Omega}{kT_k}\right) - exp\left(-\frac{(P_{hbs}^b - 2\gamma/r_{hbs}^b)\Omega}{kT_k}\right) \quad (3.18)$$

Avec k , constante de Boltzman en $J.K^{-1}$.

Dans cette expression, la pression est donnée par le code cible, il s'agit de la pression hydrostatique macroscopique en chaque point matériel où le modèle CARACAS est appelé. La pression dans les bulles HBS est évaluée via les relations exposées dans le point C de cette partie.

Dans les équations précédentes intervient un certain nombre de paramètres :

- **Coefficient de diffusion du gaz dans le fragment** : les effets surfaciques étant exacerbés par la réduction de la taille de grain, le coefficient de diffusion utilisé doit refléter un comportement dans le milieu homogénéisé tenant compte d'une diffusion volumique et surfacique le long des joints de grain. En pratique, un coefficient de proportionnalité est introduit entre le coefficient de diffusion dans le grain de la zone saine et celui utilisé dans le fragment de la zone restructurée, selon l'expression :

$$D_{hbs}^{Xe} = \alpha_{hbs}^d D_{gr}^{Xe}. \quad (3.19)$$

Ce coefficient alpha est fixé à 30 pour notre étude.

- **Fréquence de piègeage** : connaissant la concentration en bulle et le volume de la population de bulles de rim, la fréquence de piègeage se calcule en utilisant le formalisme de Ham selon l'expression

$$g_{hbs} = D_{hbs}^{Xe} (48\pi^2)^{1/3} (c_{hbs}^b)^{2/3} (V_{hbs}^b)^{1/3}. \quad (3.20)$$

- **Fréquence de remise en solution** : cette fréquence constitue un des paramètres ajustables du modèle contrôlant directement la capacité de gonflement des bulles de rim. Ce coefficient est fixé à 1.10^{-26} pour notre étude.

- **Cinétique de grossissement des bulles** : le coefficient de diffusion du cation en volume intervient en paramètre pour le calcul du grossissement des bulles de rim et sa valeur dans la zone restructurée peut à priori être différente de celle de la zone saine. Un coefficient de proportionnalité est introduit afin de corriger la loi d'évolution en zone saine. Le coefficient de diffusion du cation en volume est donnée par l'expression suivante :

$$D_{hbs}^u(T_K, F) = \alpha_{hbs}^u \left(5.10^{-5} e^{-\frac{55400}{T_k}} + 1, 2.10^{-39} F \right) \text{ en } m^2.s^{-1}. \quad (3.21)$$

Ce coefficient α_{hbs}^u est fixé à 1.0 dans notre étude.

Dans la zone restructurée, les équations présentées précédemment sont donc traitées à l'échelle du fragment de combustible homogénéisé. L'étape suivante consiste à discrétiser ce système et à mettre en place une méthode de résolution numérique. Pour cela, le fragment doit être maillé afin de résoudre l'équation de diffusion du gaz dissous et une condition à la limite de la surface du fragment doit être appliquée.

Le calcul de l'évolution du gaz dissous, considéré localisé dans le fragment, est spatialisé. On considère pour cet objet (le fragment) une géométrie sphérique, servant de support à la discrétisation spatiale des équations de diffusion. La méthode des volumes finis, particulièrement adaptée pour le traitement des problèmes de diffusion, est retenue. On parle plus précisément de sphère équivalente dans le cas du fragment. La sphère est discrétisée en un nombre de couronnes prédéfinies, et les variables du système associées à la concentration en gaz dissous sont localisées au milieu des couronnes. Par ailleurs, comme nous avons pu le voir précédemment il existe des variables non spatialisées, ne dépendant que du temps et intervenant sans les équations cinétiques du problème. L'ensemble des variables ainsi définies est regroupé dans le vecteur Y . Le système d'équation différentielles couplées auquel on aboutit est formellement mis sous la forme :

$$\frac{dY}{dt} = f(Y, t) \quad (3.22)$$

où la fonction f est, pour certaines variables, non linéaire. Pour résoudre ce type de système d'équations différentielles, le solveur LSODA [HO83] est utilisé, compte tenu du retour d'expériences significatif acquis lors de son utilisation dans de nombreux codes du CEA.

Le maillage utilisé pour le fragment est en structure de pelure d'oignons. Plusieurs types de subdivisions du rayon peuvent être considérées : maillage équidistant, équivolumique ou intermédiaire. Dans notre cas, nous avons choisi le maillage intermédiaire car il constitue un bon compromis entre les maillages équidistant et volumique. En effet, il permet de calculer plus rigoureusement la concentration moyenne en gaz dissous dans le fragment, en conditions de fonctionnement sollicitantes, dans la mesure où les zones centrales du fragments sont suffisamment raffinées et tout en conservant un raffinement optimal dans les zones périphériques du fragment. Ce maillage est exposé sur la figure ci-dessous 3.8. Ngr est le nombre de couronnes ('rg' pour ring) et i , l'indice permettant de repérer les nœuds (i appartient $[1 ; Nrg + 1]$).

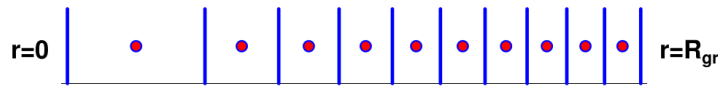


FIGURE 3.8 – Exemple de maillage intermédiaire.

En condition limite, si le gaz dissous parvient au bord du fragment ($r = R_{gr}$) sans avoir été piégé par les bulles HBS alors ce gaz est automatiquement relâché dans les volumes libre du crayon combustible.

C. Évaluation de la pression les bulles HBS

Le calcul de la pression nécessite le choix d'une équation d'état. Comme le modèle doit décrire des rayons de bulles du nanomètre au micromètre, on suit les recommandations d'Emmanuelle Muller-Casanova dans sa thèse [MC88], qui a sélectionné deux équations d'état. Si V_{at} représente le volume disponible par atome :

$$V_{at} = \frac{\frac{4}{3}\pi r_{hbs}^b \cdot C_{hbs}^b}{C_{hbs}^{Xe,b} N_{Avogadro}} = \frac{V_{hbs}^b}{C_{hbs}^{Xe,b} N_{Avogadro}}, \quad (3.23)$$

et B le covolume de l'équation de Van der Waals, on utilise :

1. pour $V_{at}/B > X_{LSUP}$ l'équation de Van der Waals complète.
2. pour $V_{at}/B < X_{LINF}$ l'équation des sphères dures avec le potentiel modifié de Buckingham.
3. pour $X_{LINF} < V_{at}/B < X_{LSUP}$ une pondération des pressions calculées par chacune des deux équations, afin de passer continument d'une expression à l'autre en fonction du volume disponible par atome.

X_{LINF} et X_{LSUP} sont choisis de façon à ce que, sur les graphes présentés dans la thèse, l'équation d'état retenue soit toujours la plus proche de la courbe de RONCHI, prise comme base expérimentale la plus fiable dans la thèse. Les valeurs $X_{LINF} = 1,2$ et $X_{LSUP} = 2$ sont ainsi acceptables.

A présent détaillons les expressions à utiliser pour les trois conditions identifiés précédemment.

1. Équation de Van Der Waals complète ($V_{at}/B > X_{LSUP}$).

$$P_{VdW} = \frac{kT_k}{V_{at} - \frac{b_0 k T_c}{P_c}} - \frac{a_0 k^2 \frac{T_c^2}{P_c}}{V_{at}^2} = \frac{kT_k}{V_{at} - B} - \frac{A}{V_{at}^2} \quad (3.24)$$

avec les notations suivantes :

B	$85.10^{-30} m^3$	covolume du Xénon, $B = b_0 k T_c / P_c = 86.10^{-30} m^3$ (l'ordre de grandeur souvent cité est de $85.10^{-30} m^3$ [Ola76])
A	$1.16346.10^{-48} Pa.m^6$	$A = a_0 k^2 \frac{T_c^2}{P_c}$
(a_0, b_0)	$(\frac{27}{64}, \frac{1}{8})$	[PL00]
T_c	$289.7^\circ K$	température du Xénon au point critique [BS97].
P_c	$58.10^5 Pa,$	pression du Xénon au point critique [BS97].
k	$1.38054.10^{-23} J/^\circ K,$	constante de Boltzmann

2. Équation des sphères dures avec potentiel modifié de Buckingham ($V_{at}/B < X_{LINF}$).

$$P_{Spheresdures} = \frac{kT_k}{V_{at}} \cdot \frac{1 + y + y^2 - y^3}{(1 - y)^3} \quad (3.25)$$

avec ;

- $y = \frac{\pi d^3}{6 V_{at}}$ est la densité réduite du gaz pour l'équation des sphères dures.
- d est le diamètre de la sphère dure. Dans le cas du potentiel modifié de Buckingham et pour le Xénon, $d = 4.45.10^{-10} \cdot (0.8542 - 0.03996 \ln(\frac{T_k}{231.2}))$ (en m).

3. Pour $X_{LINF} \leq V_{at}/B \leq X_{LSUP}$:

$$P = f_{pond}(\frac{V_{at}}{B}) \cdot P_{VdW} + \left(1 - f_{pond}(\frac{V_{at}}{B})\right) \cdot P_{Spheresdures}, \quad (3.26)$$

avec :

$$f_{pond}(\frac{V_{at}}{B}) = \frac{1}{2} \cdot \left[\cos \left(\pi \left(\frac{V_{at}/B - X_{LINF}}{X_{LSUP} - X_{LINF}} + 1 \right) \right) + 1 \right]$$

Au cours de la résolution numérique du système d'équations différentielles exposée dans le point B, la pression moyenne dans les bulles HBS sera évaluée via l'une de ces formulations exposées ci-dessus et ce en fonction du rayon moyen. Ce rayon moyen étant quant à lui évalué via l'équation 3.17 de

la partie B en supposant les bulles HBS sphériques. La concentration moyenne et le volume moyen des bulles HBS fournissent, quant à eux, la fraction volumique moyenne des bulles HBS. Pour évaluer numériquement la fraction volumique moyenne des bulles HBS, le diamètre moyen de ces bulles et leur pression moyenne, nous avons donc simulé avec ALCYONE-CARACAS le comportement d'un crayon combustible en fonctionnement normal puis nous lui avons fait subir un transitoire thermique de type APRP. Ces résultats sont exposés dans la partie suivante.

3.1.2 Simulation d'un transitoire accidentel de type APRP sur un crayon combustible irradié à fort taux de combustion

Le crayon que nous choisissons de simuler a été irradié, en fonctionnement normal, 4 cycles en REP à un taux de combustion moyen crayon de 72 GWj.tM. Son historique de puissance linéique moyen crayon est exposé via la figure 3.9. Ce crayon a été choisi car il a été irradié à très fort taux de combustion. De surcroît, la plupart des pastilles composant ce crayon sont composées en périphérie de pastille de la zone HBS : zone d'intérêt pour notre étude. De ce crayon nous avons ensuite extrait un segment pour refabriquer un mini crayon par le procédé de « fabrication » (procédé consistant à extraire un segment de crayon REP et à refabriquer à partir de ce segment un mini crayon pressurisé). Ce mini crayon, nommé crayon fils, a par la suite subi en four, une rampe thermique de type APRP que nous détaillerons par la suite. Pour la modélisation numérique le crayon fils de 300 mm de longueur axiale est discrétisé en 8 tranches équidistantes. La discrétisation axiale est définie équidistante en 8 tranches de 0.350 mm. La discrétisation radiale utilisée est celle couramment employée pour la pastille et la gaine dans ALCYONE, à savoir une discrétisation en 46 : 40 mailles pour la pastille et 6 pour la gaine. Les mailles 42 à 46 décrivent la gaine. Les mailles 36 à 41 des pastilles constituant ce crayon, correspondant à un rayon pastille respectif de 0.4 mm et de 0.407 mm, sont entièrement restructurées. Afin de simuler un accident Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) causé par la formation d'une brèche intermédiaire dans le circuit primaire, et conformément au protocole expérimental, nous réalisons sur le crayon fils un transitoire de température de type APRP, avec une cinétique de 5 °C/s de 300 °C (température en peau externe de gaine avant l'accident : température correspondant à la température moyenne du caloporteur) à 1200 °C. Le crayon fils est pressurisé à 77 bar de pression interne avant le tir du transitoire, soit la pression interne fin de vie du crayon père.

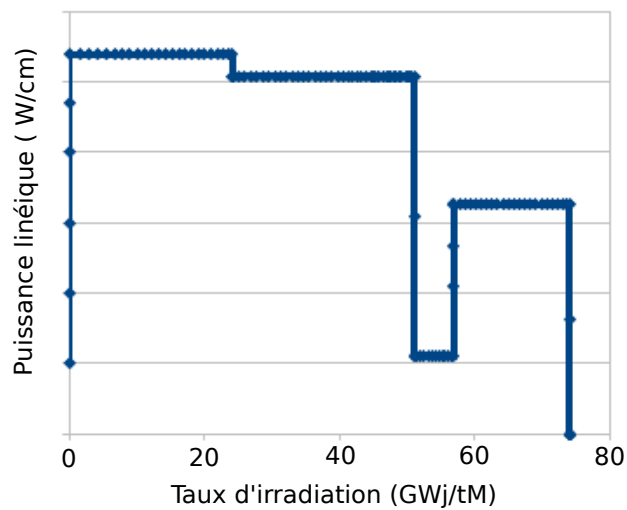


FIGURE 3.9 – Évolution de la puissance linéique du crayon lors de l'irradiation de base, avant le tir du transitoire de température de type APRP.

L'évolution de température moyenne en fonction du temps appliqué au crayon fils, se décompose suivant les étapes suivantes (cf. figure 3.10, courbe rose) :

- démarrage de l'essai à température ambiante, 20° C,
- montée en température jusqu'à 300°C et maintien plus ou moins bien de cette température cible pendant 950 secondes. Cette température est celle du caloporteur. Cette condition de température permet de se placer dans les conditions normales d'irradiation, avant le transitoire de type APRP.
- transitoire thermique de type APRP : montée en température jusqu'à 1200°C, avec une vitesse de 5°C/s,
- chute de la température simulant le renoyage progressif du cœur par les systèmes de sécurité du réacteur.

L'évolution temporelle de la pression interne du crayon fils sous ces conditions est également visible figure 3.10 (courbe orange). En première observation, nous remarquons une chute de la pression dans le crayon au cours de la montée en température (courbe rose) correspondant à une rupture de la gaine par ballonnement. Généralement lorsque la gaine a rompu par ballonnement éclatement, le combustible lui même subit une sur-fragmentation par montée en pression des bulles. La zone HBS subissant également cette sur-fragmentation, nous avons dès lors décidé de post-traiter l'état microstructural numérique de la zone HBS en amont de cette rupture de gaine et ce afin d'obtenir les informations suivantes (fraction volumique moyenne des bulles HBS, diamètre moyen de ces bulles et pression moyenne dans ces bulles) pour générer géométriquement notre VER de la zone HBS. Pour cela, nous post-traitons :

1. au niveau de la tranche axiale la plus élevée en température moyenne : soit la tranche 5 du crayon fils, afin de maximiser la pression moyenne dans les bulles HBS.
2. à l'instant précédent la rupture de gaine, soit au temps $t = 1160$ sec du temps du transitoire.
3. à l'extrême périphérie de la pastille. Soit la pastille d'un rayon R (valeur $R = x$), on choisit alors le nœud 41, correspondant à un rayon de post-traitement r , $r = 0.99R$. C'est une zone de la pastille complètement restructurée : zone HBS.

A l'instant $t=1160$ s et au nœud 41 de la tranche 5, la température locale est égale à 770 °C. A ce niveau de température, les résultats numériques du rayon moyen, de la fraction volumique et de la pression moyenne des bulles HBS sont exposés dans le tableau ci-après 3.3 :

Zone pastille	Rayon moyen des bulles HBS	Pression moyenne des bulles HBS	Fraction volumique des bulles HBS
$r = 0.99 R$	0.44 μm	70.8 MPa	21.6 %

TABLE 3.3 – Résultats ALCYONE-CARACAS pour la zone HBS de la tranche 5 à l'instant précédent la rupture de la gaine, à $t=1160$ s.

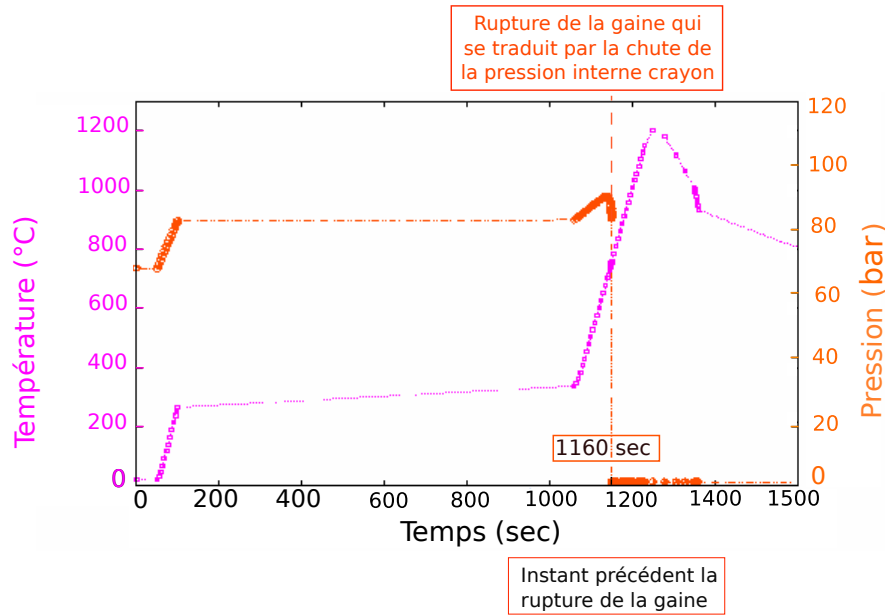


FIGURE 3.10 – Évolution de la température moyenne crayon et de la pression interne crayon lors d'un transitoire thermique de type APRP.

L'avantage de cette approche numérique est qu'elle permet de suivre l'évolution des bulles HBS (fraction volumique moyenne, rayon moyen et pression moyenne) au cours du transitoire thermique de type APRP. L'évolution de chacune de ces trois grandeurs est donnée au temps initial ($t=0$ s), au temps précédent la rupture de la gaine ($t=1160$ s), au temps où la température est maximale (soit à une température de 1200 °C, atteint à 1250 sec) sur la figure 3.11.

Nous pouvons remarquer que **le rayon moyen des bulles HBS** ne varie que très peu ($0.436\mu\text{m}$) au cours de l'essai et apparaît constant. En revanche, **la fraction volumique moyenne des bulles HBS varie de 21,6 % à 10,8 %** entre l'instant précédent la rupture de la gaine et après rupture de la gaine. Cette diminution numérique de la fraction volumique moyenne des bulles HBS est due à une décohésion et une fragmentation des joints de grains de la zone HBS, conformément à ce que nous observons sur les essais semi-intégraux, de type APRP (cf chapitre 1). Cette décohésion des joints de grains est probablement liée à la montée en pression des bulles HBS, mais il est important de souligner au lecteur que, dans CARACAS, ce phénomène micro-mécanique est traduit de manière empirique. Pour la zone HBS, si la température locale dépasse les 1100 °C, alors dans CARACAS, il est considéré que 50 % des joints de grains sont totalement endommagés et de surcroît 50 % des bulles HBS ont relâchés leur gaz de fission dans les volumes libres du crayon. A 1400 °C, c'est 100 % des joints de grains qui sont totalement endommagés et 100 % des bulles HBS qui ont relâché leur gaz de fission dans les volumes libres du crayon. Dans notre cas d'études et à 1200 °C, nous avons donc 50 % des joints de grains qui sont totalement endommagés ce qui explique que nous sommes passés d'une fraction volumique moyenne des bulles HBS de 21,6 % à 10,8 %.

L'étude de la pression moyenne dans les bulles HBS montre qu'en fin d'irradiation de base et au retour à froid (température = 20 °C), la pression est faible $6,8$ MPa (ordre de grandeur de la pression de remplissage du crayon fils fabrice). Ensuite au cours du transitoire thermique de type APRP, la pression moyenne dans les bulles HBS est de $70,8$ MPa à 1160 secondes (correspond à l'instant précédent la rupture de la gaine) et 108 MPa à 1250 secondes (instant où la température moyenne de la gaine est la plus élevée : 1200 °C). Au delà de 1100 °C (1^{er} seuil de fragmentation de la zone HBS implémentée dans CARACAS), la pression continue de monter dans les bulles HBS qui ne sont pas impactées par le premier seuil de fragmentation de CARACAS. Le rayon moyen étant invariant au cours du temps,

la pression interne augmente avec la température. Ces ordres de grandeurs seront comparés dans la partie 3.2.2.3 à la littérature ainsi qu'aux résultats expérimentaux.

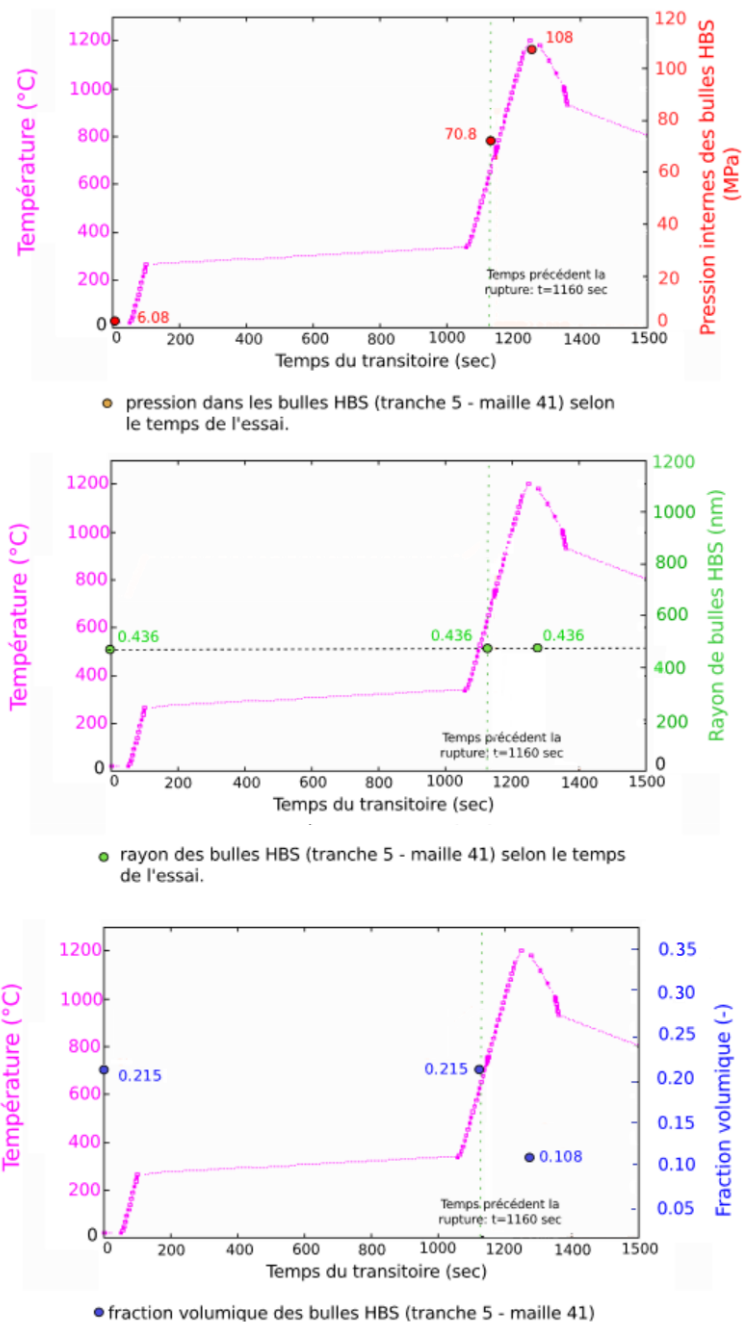


FIGURE 3.11 – Évolution du rayon moyen, de la fraction volumique moyenne et de la pression interne moyenne des bulles HBS pour le transitoire thermique de type APRF simulé par ALCYONE-CARACAS, pour les temps suivants : $t=0$ s (temps correspondant au retour à froid à 20°C après l'irradiation de base), $t= 1160$ s (temps correspondant avant l'instant de rupture de la gaine lors du transitoire de type APRF) et $t= 1250$ s (temps correspondant à la température maximale lors du transitoire de type APRF).

Ces données numériques ne donnent cependant qu'une estimation moyenne de la pression, du rayon et de la fraction volumique des bulles HBS. Or, les analyses expérimentales exposées dans la partie suivante 3.2 de la zone HBS montrent qu'il existe un fuseau diamétral des bulles HBS. L'étude numérique ne nous permet donc pas de conclure sur un fuseau diamétral de bulles à utiliser pour générer notre VER de la zone HBS. Dans CARACAS, pour décrire rigoureusement le spectre diamétral des bulles il faudrait modéliser aussi les défauts du réseau cristallin : par exemple les lacunes puisque les bulles grossissent par apport de lacunes. Mais pour des raisons de temps de calculs, CARACAS ne prend pas en compte ce niveau de complexité. Afin que notre VER soit le plus proche possible de la réalité, nous compléterons donc la caractérisation de la zone HBS par les observations expérimentales disponibles. La partie suivante fait état de l'étude expérimentale de la microstructure HBS observée dans les pastilles des crayons REP irradiés à fort taux de combustion et de disques analytiques irradiés à fort taux en réacteur expérimental (exemple : Halden). Dans cette partie nous pourrions également analyser la valeur de pression initiale la plus adéquate à appliquer dans les bulles HBS avant que l'accident de type APRP ne survienne. Celle-ci étant déterminante pour la suite de notre étude, à savoir les calculs exposés dans les chapitres suivants. Les résultats numériques obtenus avec ALCYONE-CARACAS seront également confrontés aux mesures expérimentales dans cette partie.

3.2 Approche expérimentale

3.2.1 Moyens d'acquisitions expérimentaux pour obtenir le spectre diamétral des bulles HBS et leur fraction volumique par classe diamétrale - Résultats.

Ce travail est réalisé grâce à l'étude de coupes d'échantillons observées via des métallographies, observées par microscopes optiques ou au MEB (cf annexe A.3 pour le principe de la technique MEB). Deux types d'échantillons sont étudiés dans cette études :

- des disques de faible épaisseur représentatifs d'une microstructure cible.
- et des pastilles, représentatif du combustible en réacteur.

La figure 3.12 présente deux images des échantillons étudiés à la suite.

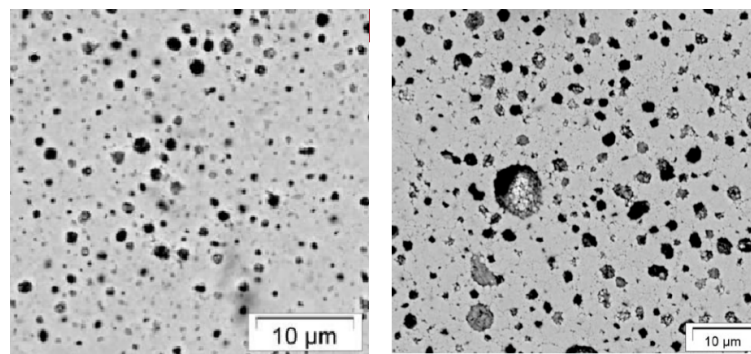


FIGURE 3.12 – Cartographies MEB de deux zones HBS de l' UO_2 standard, irradié à fort taux de combustion. Zones HBS sur pastille irradiée en réacteur expérimental à gauche et zone HBS irradié en réacteur expérimental à droite. Les points noirs représentent les bulles et les pores HBS.

3.2.1.1 Zone HBS sur pastilles irradiées

Une analyse des examens post irradiation a été réalisée sur un crayon du programme ALIX (crayon précurseur de la gestion GALICE) afin de déterminer le fuseau diamétral des bulles HBS le plus repré-

sentatif possible. Les observations ont été réalisées au LECA/STAR, laboratoire du CEA de Cadarache. Les analyses MEB de ce combustible UO_2 irradié à un taux de combustion de 73 GWj/tM moyen pastille ont permis de réaliser un comptage et un ordonnancement des porosités (pores + bulles) dans la zone HBS. La courbe bleue de la figure 3.13 montre la fréquence de répartition (fraction volumique) des porosités inter granulaires en périphérie de pastille ($r=0.99R$ avec R , rayon de la pastille) allant d'une taille inférieure à $0.2 \mu m$ jusqu'à $4 \mu m$ et représentant une fraction volumique cumulée de 9.01 % de l'échantillon testé. La fréquence de chaque classe diamétrale ne peut être donnée pour des raisons de confidentialité. Les fréquences sont représentées par classe de « Diamètre de Cercle Équivalent » (DCE) : c'est à dire que les porosités sont supposées sphériques, d'un diamètre conservant le volume de la bulle observée. Nous savons qu'ici, la porosité inter granulaire est constituée uniquement de bulle HBS : le fragment étudié ayant été totalement restructuré. Cependant, on assimilera plutôt les inclusions au dessus de $2 \mu m$ à des porosités plus qu'à des bulles HBS (voir analyses de la zone périphérique) [BKTL03].

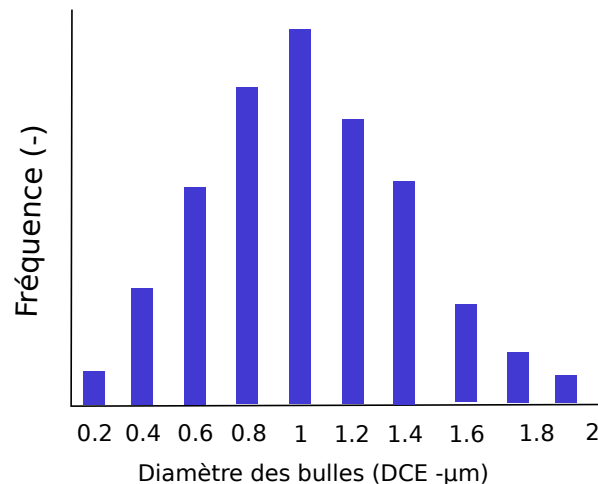
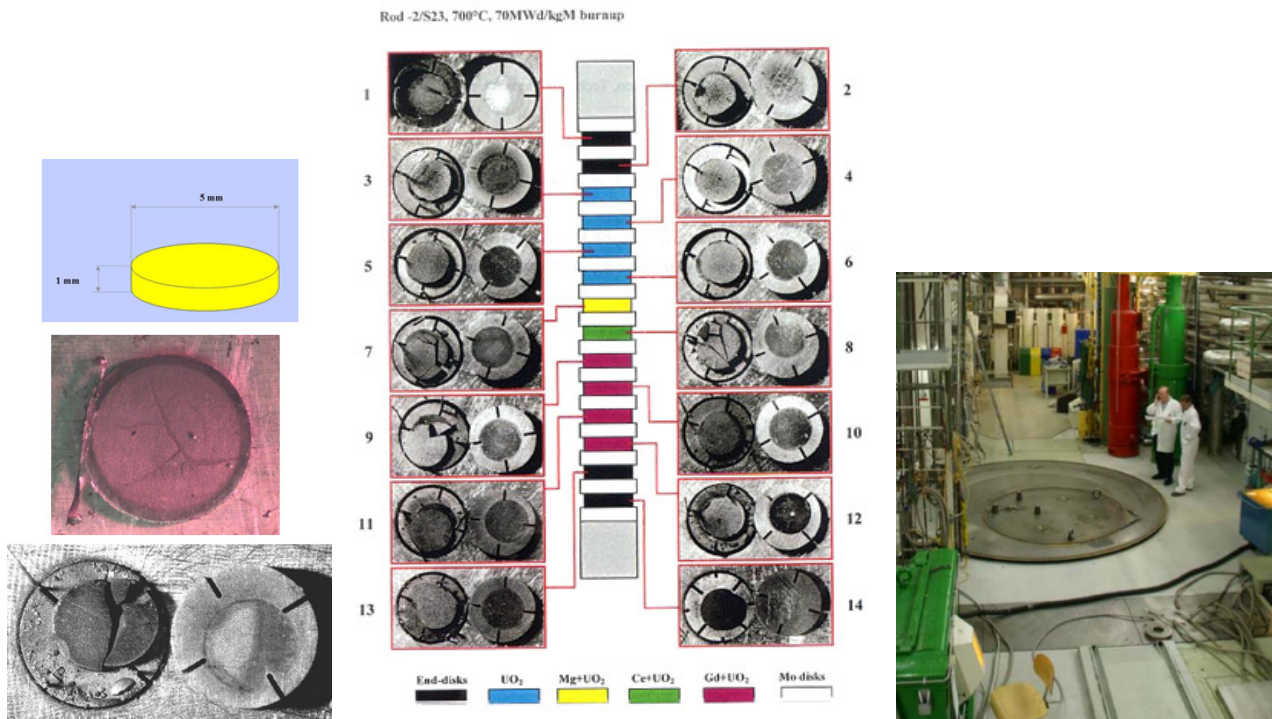


FIGURE 3.13 – Fuseau diamétral des bulles HBS sur du combustible UO_2 irradié à fort taux de combustion en REP EDF.

3.2.1.2 Les disques HBS

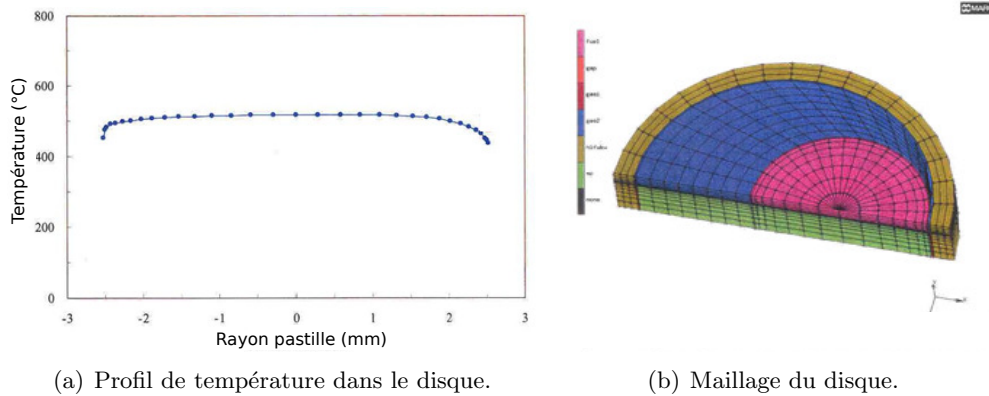
Pour étudier de façon paramétrique le développement de cette zone HBS (influence du taux de combustion et de la température sur l'apparition de cette zone HBS), plusieurs programmes expérimentaux et projets ont été lancés dans les années 1990. Parmi ces projets nous pouvons citer le projet High Burnup Rim Projet [BKTL03]. Dans ce projet, plusieurs irradiations expérimentales ont eu lieu dont l'irradiation de disques. Dans le paragraphe qui suit nous rappelons succinctement le principe d'irradiation des disques. Les disques de combustible sont empilés en alternance avec des disques de molybdène dans des crayons. Un exemple de leur arrangement est mentionné figure 3.14. Ces crayons sont irradiés à des taux de combustion différents (40, 60 80 et 100 GWj/tM) en réacteur expérimental (comme par exemple, Halden en Norvège). La pression du caloporteur autour des crayons est très éloignée de celle que nous avons en REP industriel (1 bar contre 155 bar). Par crayon, les disques subissent des taux de combustion moyens et des températures moyennes proches de ceux du crayon et ce compte tenu du faible gradient axial (crayon ayant une faible longueur axiale). Radialement, la température et le taux de combustion sont également quasi uniformes dans le disque (voir figure 3.15) et ce grâce au fort enrichissement des pastilles d' UO_2 en matière fissible (enrichissement en $U^{235} = 25\%$ en teneur massique) et du fait de la présence de cales de molybdène entre chaque disque. Le taux de combustion moyen et la température moyenne par disque, paramètres qui sont parfaitement

contrôlés et mesurés, permettent donc de réaliser une étude paramétrique du développement de la zone HBS au cours de l'irradiation.



(a) Exemple d'échantillon de disques après irradiation. (b) Exemple de répartition des disques de différents combustibles dans un crayon expérimental. (c) Le réacteur d'Halden.

FIGURE 3.14 – Exemple de crayon, (rod 2 irradié à 70 GWj/tM et à 700 °C) constitué de disques, irradié dans le réacteur expérimental Halden.



(a) Profil de température dans le disque. (b) Maillage du disque.

FIGURE 3.15 – Profil de température radial dans le disque estimé lors du prédimensionnement du crayon expérimental

Ces conditions permettent d'avoir une microstructure homogène tout le long du rayon de la pastille et d'étudier le comportement de la zone HBS de manière découplée en testant ces échantillons. Dans le cadre du programme expérimentale NFIR [NFI11], un disque d'UO₂ standard a été irradié à 103.5 GWj/tM. Celui-ci était totalement restructuré (zone HBS) avec la présence de 88 % des gaz de

fission dans les bulles HBS. Quatre fragments de ce disque ont été caractérisés au MEB en amont d'un test de recuit thermique (transitoire de type APRP similaire à celui exposé précédemment sur mini crayon mais réalisé ici sur fragments de pastille et réalisé en four au laboratoire du LECA/STAR du CEA Cadarache : four MERARG sans pression hydrostatique autour des fragments ou four MEXIICO avec pression hydrostatique autour des fragments). Un histogramme des tailles de porosités (pores + bulles) qui en est extrait est présenté sur la figure 3.16 : histogramme rouge. Celui-ci est comparé aux résultats sur pastille présentés précédemment : histogramme bleu. Les fréquences par classes de bulles ne sont pas transmises pour des raisons de confidentialités. Pour le disque irradié en réacteur expérimental, la fraction volumique cumulée de porosité dans la zone HBS est de 10,3 % contre 9,01 % pour la pastille irradiée en REP industriel. Cette différence provient probablement de la légère différence du taux de combustion entre les deux échantillons. Le premier ayant été irradié à 103 GWj/tM, tandis que la pastille a subi un taux de combustion moyen pastille de 73 GWj/tM, soit un taux local en périphérie de l'ordre de 90 GWj/tM (accroissement en périphérie de pastille d'un facteur de 1.2 environ, du fait de la présence de Pu^{239} fissible par capture de U^{238}). La pastille ayant un taux de combustion local moins élevé, celle-ci a donc développé une fraction volumique de porosité HBS moins conséquente. Nous remarquons également sur la figure 3.16, que le fuseau diamétral de porosités HBS du disque (histogramme rouge) est plus étendu que celui de la zone HBS de la pastille irradiée en REP industriel (histogramme bleu). Pour le disque, la moyenne diamétrale des porosités HBS (DCE) vaut $1.8 \mu\text{m}$ tandis que pour la pastille celle-ci vaut $1 \mu\text{m}$. Cette différence de fuseau diamétral des porosités HBS, vient du fait que les disques étaient insérés dans les crayons non contraints lors de leur irradiation en réacteur expérimental (pression externe autour des crayons de 1 bar), tandis que les pastilles étaient insérées dans des crayons contraints lors de leur irradiation en REP industriel (pression externe autour des crayons 155 bar). Pour les disques, la faible pression externe autour des crayons a probablement favorisé le grossissement des porosités HBS, et plus précisément des bulles HBS, ce qui explique le décalage de ce fuseau diamétral vers les diamètres plus importants.

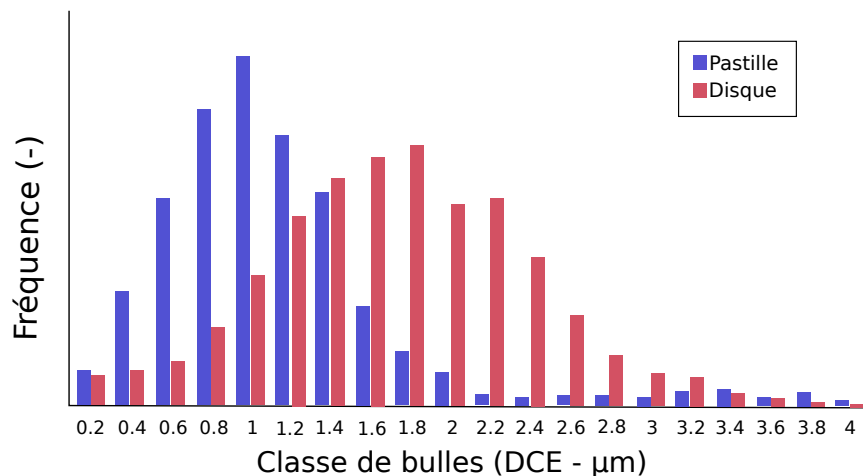


FIGURE 3.16 – Comparaison des distributions de taille de porosités HBS selon l'historique d'irradiation et les conditions d'irradiation. Histogramme bleu = zone HBS d'une pastille irradié en REP EDF à un taux de combustion local 90GWj/tM. Histogramme rouge d'un disque entièrement restructuré irradié en réacteur expérimental Halden à un taux de combustion de 103GWj/tM

L'observation expérimentale de ces deux types de microstructures nous permet donc de déterminer pour deux historiques d'irradiation et conditions d'irradiation (réacteur REP ou expérimental) : un faisceau diamétral de porosité HBS et donc de surcroît un fuseau diamétral des bulles HBS. De plus, nous connaissons grâce à ces mesures expérimentales la fraction volumique des bulles HBS par

classe diamétrale. Ces informations n'étaient pas disponibles par l'approche numérique exposée en partie 3.1.2 de ce chapitre. Nous notons également que le diamètre moyen expérimental des bulles HBS obtenu sur pastille irradiée REP est en bonne adéquation avec celui obtenu numériquement dans la partie précédente : $1 \mu\text{m}$ contre $0,88 \mu\text{m}$. Ce résultat est cohérent car dans la partie numérique il s'agissait également de pastilles REP irradiées à un taux de combustion similaire. Notons également que les fractions volumiques cumulées sont très proches dans les deux cas : 10,3 % et 9,01 %.

Cependant, les méthodes utilisant le MEB ne permettent pas de déterminer expérimentalement la pression dans les bulles. Pour y accéder, différents modes opératoires permettant la mesure d'une pression moyenne dans les bulles HBS existent. Ils sont exposés dans la partie suivante 3.2.2.

3.2.2 Moyens d'acquisitions expérimentaux pour obtenir la pression dans les bulles HBS et résultats

Différents travaux expérimentaux de la littérature (dont Valot [VDPR07], Nogita [NU98], Thomas [Tho91]) ont permis de déterminer la pression dans les bulles, selon leur diamètre et la concentration en atomes de xénon dans les bulles. En effet, la pression est une grandeur qui s'obtient de manière indirecte puisque ce n'est pas une donnée mesurable lors des Examens Destructifs. Elle doit être déduite de la concentration de gaz dans les bulles, de la dimension des bulles et d'une loi d'état, permettant de décrire la relation de pression et température. Dans la partie 3.2.2.1, nous rappelons les lois d'états exposées dans la partie 3.1.1.2 (point C), pour calculer les pressions dans les bulles. Nous détaillerons ensuite les valeurs de pression obtenues dans la bibliographie et leurs méthodes d'acquisitions dans la partie 3.2.2.2. Enfin, ces résultats seront confrontés, dans la partie 3.2.2.3 aux valeurs obtenues numériquement dans la partie précédente 3.1.2 grâce à ALCYONE-CARACAS.

3.2.2.1 Loi d'état pour calculer la pression dans les bulles

Une bulle augmente sa taille grâce à l'intégration d'un atome provenant de la fission. Elle retrouve alors l'équilibre par absorption de lacunes. L'équilibre de la bulle est par conséquent étroitement lié au gradient de concentration en lacunes et à leur mobilité. A l'équilibre, les bulles obéissent à l'équation 3.27, avec la pression interne P , la pression hydrostatique P_0 , le rayon r et l'énergie de surface γ :

$$P = \frac{2\gamma}{r} + P_0 \quad (3.27)$$

La valeur de l'énergie de surface moyenne de l' UO_2 est de $0,834 \text{ J}\cdot\text{m}^{-2}$ (selon [SER⁺06]). Elle a été établie par des calculs de DFT (Density Functionnal Theory) pour les différentes faces [111], [110] et [100] de l' UO_2 .

Sur pressurisation des bulles

L'état thermodynamique des bulles a été étudié [Tho91], [NU98] sur des combustibles irradiés. Lorsque la densité en gaz est élevée, la loi des gaz parfaits ne peut s'appliquer. En effet, dans le modèle du gaz parfait, les molécules n'exercent aucune force les unes sur les autres. Pour expliquer les propriétés des fluides réels et prendre en compte les densités élevées, il faut prendre en compte ces forces intermoléculaires. Il a été constaté notamment que les bulles nanométriques possèdent une densité en gaz élevée, ($1,6$ à $3,6 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$) et que pour les plus pressurisées, leur densité peut être proche de la densité du xénon solide ($3,8 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$). Le paragraphe suivant présente différentes équations d'état du xénon et en particulier celles les plus adaptées, sélectionnées pour le calcul de la pression des bulles de gaz de fission du combustible irradié.

Lois d'état permettant de déterminer les pressions dans les bulles

Plusieurs équation d'état permettent de lier la pression au volume molaire. Celles-ci ont été décrites dans la partie C 3.1.1.2. Nous renvoyons donc le lecteur à cette partie pour plus d'informations. Afin de sélectionner les équations adaptées au xénon, les différentes valeurs déduites des équations d'état ont été comparées à des valeurs expérimentales en appliquant la méthodologie employée dans la thèse de Muller-Casanova [MC88]. Une analyse des différents modèles a été réalisée dans la thèse de C. Cagna [Cag16].

Comme exposé dans la partie 3.1.1.2, les valeurs de pression très différentes sont constatées, selon le volume molaire et suivant l'équation d'état employée. Une bonne correspondance est observée entre les données expérimentales et l'équation de Buckingham pour les faibles volumes molaires et avec celle de Soave 3.28 pour les volumes molaires élevés, cela pour différentes températures

Nous retiendrons pour les volumes molaires inférieurs à $40 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$, l'équation des sphères dures avec le potentiel modifié de Buckingham 3.25 (cas des bulles nanométriques). Pour les volumes molaires supérieurs à $40 \text{ m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$, l'équation d'état de Soave est utilisée (cas des bulles micrométriques). Elle s'inspire de l'équation d'état de Van der Waals 3.24 qui permet de décrire les données expérimentales dans de nombreuses situations [Soa72].

$$P_g = \frac{RT}{(V_m - b)} \cdot \frac{a}{V_m^2 + cbV_m + db^2}, \quad (3.28)$$

avec :

P_g : Pression du gaz (Pa),

R : Constante des gaz parfait = $8,314 \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$,

T : Température (K),

V_m : Volume molaire ($\text{m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$).

$a = \frac{a_0 R^2 T_c^2}{P_c}$ et $a_0 = 0.42748 (1 + f(1 - (\frac{T}{T_c})^{0.5}))^2$, et $b = b_0 R \frac{T_c}{P_c}$, $b_0 = 0.08664$; $c = 1$; $d = 0$;

$T_c = 289,7 \text{ K}$, la température critique;

$P_c = 5,84 \cdot 10^6 \text{ Pa}$, la pression critique,

et $f = 0,49258$, à la température critique.

Dans l'analyse expérimentale exposée dans la partie suivante, ces deux lois d'état ont été utilisées pour déterminer la pression moyenne dans les bulles. Le choix de la loi étant gouverné par le volume molaire de ces bulles.

3.2.2.2 Méthode d'acquisitions expérimentales pour évaluer la pression dans les bulles et résultats

La méthode globale : les références [DVP⁺08], [VDPR07], [Lev13], [Cag16] présentent la méthode de façon détaillée. Dans cette partie nous nous limitons ici à une description succincte. Nous renverrons donc le lecteur aux références précédentes pour de plus amples informations. Cette méthode utilise deux approches suivant le traitement utilisé :

- pression moyenne sur l'ensemble des bulles caractérisées,
- pression moyenne par classe diamétrale des bulles caractérisées.

Les deux approches utilisent des mesures couplées EPMA, SIMS et MEB. Les principes de ces techniques de mesure sont rappelés en annexe A. Dans les deux approches le principe se décompose en trois étapes :

1. **première étape - Mesure SIMS.** Sur combustibles irradiés, le SIMS permet de mesurer entre autres, les gaz de fission dont le xénon. Pour chaque point de mesure, c'est à dire pour chaque abrasion SIMS, une partie du xénon est collectée en fonction du temps de pulvérisation, ce qui permet d'obtenir un profil de ^{132}Xe . Sur le profil du ^{132}Xe acquis lors de la pulvérisation au SIMS

combustible, de nombreux pics plus ou moins importants sont repérés. Ils correspondent au perçage de bulles de gaz de fission. Ces pics se superposent à une ligne de base associée au ^{132}Xe dissous ou nano précipité dans le combustible. La pulvérisation de l'échantillon conduit à la formation d'un cratère. Le courant primaire et le volume des cratères peuvent varier d'un cratère à l'autre lors d'une même série de mesures. En effet, la quantité de gaz rendue disponible pour l'analyse locale, en plus de dépendre de la concentration locale, dépend du volume pulvérisé. D'autre part, l'ionisation du xénon a lieu par interaction avec le faisceau d'ions primaire. Pour tenir compte de ces variations, l'intensité du signal est normalisé par rapport au courant primaire et par rapport à la quantité de matière pulvérisée, soit le volume des cratères. Ce volume V_c peut être estimé de deux façons. La quantité de matière pulvérisée peut être estimée à partir d'une mesure par profilométrie des volumes des cratères formés. En l'absence de telles mesures, ce volume est considéré comme dépendant linéairement du courant primaire et est fonction de la vitesse de pulvérisation de l' UO_2 dans les conditions opératoires mise en oeuvre pour les analyses SIMS [Ras]. Une fois l'intensité du signal normalisée, celui-ci est traité (cf [DVP⁺08], [VDPR07] pour les différentes étapes de traitement). Ces différentes étapes permettent en outre calibrer la mesure SIMS du ^{132}Xe pour la rendre quantitative et obtenir une concentration en Xénon total dans les bulles, nommée n_b ,

2. **seconde étape - Acquisition MEB et analyse d'image.** L'objectif de cette partie est de déterminer le volume global occupé par les bulles de gaz de fission. Pour cela, plusieurs images MEB sont acquises dans la zone d'intérêt choisie du combustible. Les images sont traitées par le logiciel AnalySIS. Cela consiste à seuiller les images en niveaux de gris et à les binariser afin de transformer les bulles en objets que le logiciel est capable d'analyser : comptage, mesure diamètre DCE (Diamètre Circulaire Équivalent) de l'aire et de la forme. Il est alors possible de déterminer la fraction surfacique f_s des bulles. De même, des histogrammes en nombre de bulles par unité de surface et en pourcentage surfacique en fonction de la tailles des bulles sont obtenus. Les histogrammes 2D sont transformés par l'outil présenté dans la note [Noi06] vers une information volumique (histogrammes en nombre de bulles par unité de volume et pourcentage volumique en fonction du diamètre équivalent). La fraction volumique cumulée étant nommée f_v .
3. **troisième étape - Détermination de la pression dans les bulles.** Dans cette partie, deux méthodes de calcul de la pression dans les bulles peuvent être utilisées. Ces deux méthodes constituent donc les deux approches de la **méthode globale**.
 - pour rappel, la première donne la pression moyenne de l'ensemble des bulles percées au SIMS,
 - la seconde la pression des différentes bulles ouverte en fonction de leur diamètre à partir de traitement d'histogramme de quantité de gaz et de taille de bulles.

La première approche consiste à mesurer la quantité de gaz provenant des bulles dans le volume pulvérisé et à l'associer à la fraction volumique des bulles dans ce même cratère afin d'obtenir une pression moyenne. Le volume molaire est obtenu par l'équation :

$$V_m = \frac{f_v * V_c}{n_b}, \quad (3.29)$$

avec

- f_v , la fraction volumique des bulles (-),
- $V_{cratere}$, le volume du cratère (m^3),
- et n_b la quantité de gaz dans les bulles (mol).

Le xénon n'est pas le seul élément présent sous forme de gaz à température ambiante [Val99]. En effet, le krypton doit aussi être pris en compte dans le calcul de la pression. Un rapport a , est

utilisé entre le Xe et le Kr obtenu à partir des calculs neutroniques CESAR [DP04] sur chacun des combustibles, soit environ 9, en supposant le même comportement pour les deux gaz, soit l'équation :

$$n_b = n_{Xe} \left(1 + \frac{1}{a}\right). \quad (3.30)$$

La pression moyenne des bulles est obtenues grâce à l'équation d'état adaptée (cf 3.1.1.2) et ce en fonction de la valeur du volume molaire mesuré.

La seconde approche (méthode histogramme) permet d'obtenir l'évolution de la pression dans les bulles en fonction de leur taille. L'évaluation de la pression consiste à comparer les histogrammes provenant du SIMS et de l'analyse d'images. Pour cela, les histogrammes sont considérés comme équivalents, permettant d'associer, pour chaque limite de classes, les nombres de coups dans une bulle (et donc les quantités de gaz) et les tailles de ces bulles. De plus, on considère que les plus grosses bulles correspondent aux classes de contenu de gaz les plus élevées.

Pour faire se correspondre les histogrammes SIMS et MEB, il est nécessaire de vérifier que les valeurs de nombre de bulles par unité de volume, obtenues par les deux techniques, soient proches. Ainsi il est possible de calculer le volume molaire en fonction du diamètre des bulles. La pression moyenne par classe diamétrale des bulles est obtenue grâce à l'équation d'état adaptée (cf 3.1.1.2) et ce en fonction de la valeur du volume molaire mesuré par classe diamétrale.

la méthode monobulle Cette méthode a pour objectif de compléter les méthodes globales par la mesure du gaz provenant d'une bulle unique, isolée sous la surface. Il ne s'agit plus de déterminer les pressions des bulles d'un cratère mais d'une seule bulle ouverte par le SIMS. après une phase d'optimisation des paramètres d'acquisition du SIMS, chaque étape de la méthodologie est donnée et appliquée aux deux échantillons étudiés. Le schéma 3.17 présente la méthodologie établie pour la méthode « monobulle ».

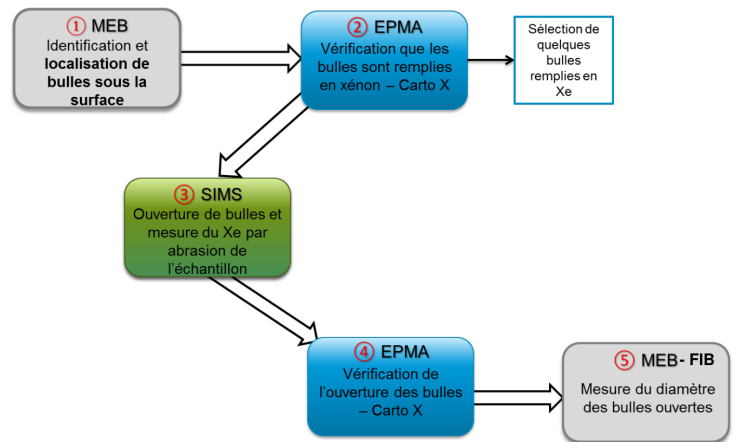


FIGURE 3.17 – Description méthode « monobulle » [Cag16]

Le premier passage au MEB et à la microsonde a pour but de caractériser l'état initial et de sélectionner les grains d'intérêt sur lesquels l'ensemble des examens vont s'effectuer. Des images au MEB de ces grains permettent de localiser les bulles sous la surface. L'examen à la microsonde permet de visualiser les bulles remplies en xénon. Une abrasion au SIMS permet d'ouvrir quelques bulles, les plus proches de la surface et de mesurer le gaz présent. Le second passage à la microsonde permet de déterminer les bulles qui se sont ouvertes lors de l'examen au SIMS et de les repérer pour la mesure de leur diamètre par le MEB (en 2D ou en 3D). De plus, des mesures SIMS et EPMA sont réalisées dans une zone sans bulle afin de réaliser la calibration.

Les pressions estimées dans les bulles de combustibles irradiés issues de zones saines ou restructurées sont exposées sur la figure suivante à 300 °K, et ce via les deux méthodes présentées précédemment et via d'autres méthodes (MEB EDX). Ces mesures permettent de parcourir un spectre de tailles de bulles de 2 à 1500 nm de rayon. Les techniques employées sur les bulles nanométriques, donnent une information sur une bulle bien définie. Quant aux techniques employées sur les bulles micrométriques, la pression moyenne porte sur un spectre de bulle dans le cas de la méthode globale EPMA-MEB-SIMS ou sur une bulle bien définie dans le cas de la méthode monobulle. A 300 °K, les pressions sont globalement proches de l'équilibre ou légèrement sur pressurisées. Une grande dispersion des valeurs de pression est observée selon la taille de bulle : une pression supérieure à 1 GPa pour les plus petites bulles et une pression entre 5 et 50 MPa pour les plus grosses bulles.

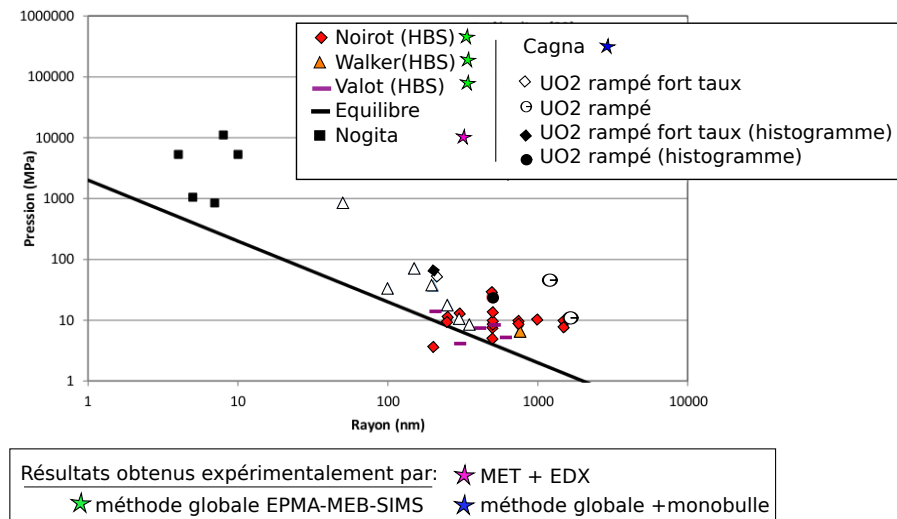


FIGURE 3.18 – Comparaisons des valeurs de pressions en fonction du rayon des bulles. Données de la littérature et résultats expérimentaux « monobulle » et méthodes globales sur les combustibles rampés et irradiés à fort taux de combustion en fonctionnement normal.

Dans notre cas d'étude (bulles issues de la zone HBS), Valot [VDPR07] et Noiroit [NDL08] ont mesuré la pression dans les bulles HBS sur du combustible irradié à un taux de combustion de 67 GWj/tM. Dans la zone périphérique du combustible avec une structure HBS, les deux auteurs estiment pour des bulles de rayon moyen d'environ 0,8 μm , la pression est entre 6 et 11 Mpa à 300 °K. (température ambiante), soit environ 90 MPa à 500 °C (NB : 500 °C étant la température de la zone HBS en condition de fonctionnement normal). Pour un taux de combustion de 65 GWj/tM et à partir d'une analyse similaire en périphérie (zone HBS) Walker [WBP⁺09] a obtenu une pression de 45 MPa pour des bulles de rayon moyen de 0,76 μm et une température de 400 °C. Dans la partie suivante, nous allons donc confronter ces résultats expérimentaux à ceux que nous avons obtenus par approche numérique avec ALCYONE-CARACAS dans la partie 3.1.2 et à d'autres résultats numériques issus de la littérature.

3.2.2.3 Confrontation des résultats expérimentaux de la pression dans les bulles HBS aux résultats numériques

Lors de notre simulation numérique avec ALCYONE-CARACAS, nous avons obtenu les résultats suivants (cf tableau suivant 3.4) à la température ambiante (température correspondante au retour à

froid après l'irradiation de base), à 500 °C (température correspondante à celle subie par la zone HBS en condition de fonctionnement normal) et à 770 °C (température correspondante à celle subie par la zone HBS lors d'un transitoire thermique de type APRP juste avant la rupture de la gaine).

Localisation	Rayon de la bulle (μm)	Fraction volumique (%)	Température (° C)	Pression (MPa)
r= 0.99 R	0.436	21.5	20	6.08
r= 0.99 R	0.436	21.5	770	70.8
r= 0.99 R	0.436	21,5	500	44

TABLE 3.4 – Estimations des pressions pour les bulles HBS données par CARACAS, en fin d'irradiation de base 72GWj/tM, et lors de la rupture de gaine pour un transitoire thermique à 5° C/sec.

Pour un rayon de bulles de 0,436 μm , nous constatons que la pression moyenne des bulles HBS calculée par ALCYONE-CARACAS à 20 °C est cohérente avec les mesures expérimentales (cf. 3.2.2.2). La pression estimée numériquement est légèrement sous prédictive.

D'autres auteurs ont cherché à calculer la pression dans les bulles, en particuliers celles en périphérie de combustible, dans la structure HBS. Dans certains modèles, la croissance de bulles moyennes de 0.5 μm , entre 400 et 500 °C, est expliquée par un mécanisme de « dislocation punching » [Los00] [Liu07], lequel sous-entend que la pression est supérieure à la pression d'équilibre 3.2.2.2. Le tableau suivant récapitule les résultats de pression des bulles à partir de ce mécanisme.

Auteurs	Rayons moyen de bulle (μm)	Température Burn up	Pression (MPa)	Mécanisme
Nogita [NU95]	0,5-2	400 °C - 23 GWj/tM	48 - 194	Dislocation punching - $P_{exces} = \mu b/r$
Koo [KLCS01]	0,5	~500 °C - 67 GWj/tM	477	Dislocation punching - Van Der Waals $P_{exces} = C/r$ avec C une constante à déterminer en fonction de la température et du taux de combustion.
Liu [Liu07]	0,5	~500 °C - 72 GWj/tM	94	Dislocation punching - Van Der Waals $P_{exces} = C/r$ avec C une constante à déterminer en fonction de la température et du taux de combustion.
Une [UKH06]	0,5	~500 °C - 80 GWj/tM	90 - 210	Dislocation punching - Ronchi $P_{exces} = C/r$ avec C une constante à déterminer en fonction de la température et du taux de combustion.
Gao [GCX ⁺ 13]	0,5	~500 °C - ≤ 90 GWj/tM	100	Dislocation punching - Ronchi $P_{exces} = C/r$ avec C une constante à déterminer en fonction de la température et du taux de combustion.

TABLE 3.5 – Tableau récapitulatif des calculs de pression des bulles de gaz de fission de la zone HBS et mécanismes associés [Lev13].

Ainsi, pour des bulles de taille moyenne de 0,5 μm , la pression est évaluée entre 50 et 200 MPa, à la température caractéristique de la zone HBS, de 500 °C. Une exception est observée pour Koo qui a évalué la pression à environ 500 Mpa, valeur surévaluée par une erreur de distribution des bulles

considérées. Ces résultats sont du même ordre de grandeur que ceux obtenus pour les bulles HBS dans le cadre de notre simulation numérique avec ALCYONE-CARACAS. Notons néanmoins que la pression moyenne des bulles HBS estimée avec ALCYONE-CARACAS se situe en borne inférieure des autres simulations numériques et des mesures expérimentales. Il est néanmoins important de rappeler que les mesures expérimentales exposées sur la figure 3.18 sont entachées d'une forte incertitude expérimentale. Les sources d'incertitudes des méthodes de détermination de la pression des bulles de gaz de fission par SIMS/MEB/EPMA, ont été identifiées. Le calcul de la pression comprend l'évaluation du volume molaire du gaz et le choix de l'équation d'état. En ce qui concerne le volume molaire, il est déterminé à partir de la mesure de la quantité de gaz et celle du volume des bulles. Les incertitudes proviennent ainsi, d'une part, des erreurs de mesures SIMS, microsonde et de profilométrie et d'autre part des erreurs de mesures du volume des bulles effectuées au MEB. Un travail récent a permis de déterminer des niveaux d'incertitudes pour chacune des sources et attribue ainsi une incertitude entre 30 et 40 % pour la mesure du volume molaire de gaz. Ce travail n'est qu'à son début. L'évaluation des erreurs de mesures est un travail en soi qui demande à être poursuivi et approfondi.

3.2.3 Collecte des informations pour générer un VER de la zone HBS et son chargement local - Bilan des approches numériques et expérimentales

L'objectif des parties 1 et 2 de ce chapitre était de présenter les données existantes ainsi que les méthodes nécessaires pour représenter et discrétiser un milieu poreux (bulles pressurisées) représentatif de la zone HBS du combustible UO_2 irradié à fort taux de combustion. Même si la zone HBS est un matériau polycristallin avec des bulles intergranulaires, dans notre étude nous avons décidé de ne considérer que les bulles intergranulaires seraient noyées dans une matrice homogène et ce compte tenu du très petit diamètre moyen des grains devant le diamètre moyen des bulles HBS. Pour générer notre VER de la zone HBS et en déduire son chargement local nous avons besoin des informations suivantes :

- le spectre diamétral des bulles HBS,
- la fraction volumique des bulles HBS par classe diamétrale,
- la pression interne dans ces bulles HBS.

Pour obtenir ces informations, deux approches complémentaires ont été utilisées dans les parties 1 et 2 de ce chapitre :

- **l'approche numérique.** Celle-ci nous a permis de connaître numériquement l'évolution de la fraction volumique moyenne des bulles HBS, de leur volume moyen et leur pression moyenne avant accident (fonctionnement normal), mais aussi au cours d'un accident de type APRP, plus précisément juste avant l'instant de fragmentation de la zone HBS : instant d'intérêt pour nos études de localisation exposées dans les chapitres 4 et 5. L'inconvénient de l'approche numérique résidait dans le fait que ces variables étaient des valeurs moyennes. Or, expérimentalement nous observons dans la zone HBS des bulles de diamètres différents. En complément de l'approche numérique nous avons donc eu recours à l'approche expérimentale.
- **l'approche expérimentale.** Celle-ci nous a permis de caractériser avant accident de type APRP, deux combustibles différents, irradiés à fort taux de combustion :
 - pastilles irradiées en REP industriel
 - disques irradiés en réacteur expérimental.

Plusieurs méthodes expérimentales complémentaires ont été présentées et utilisées pour déterminer le spectre diamétral des bulles HBS, la fraction volumique des bulles HBS par classe diamétrale et la pression moyenne dans ces bulles. Ces caractérisations expérimentales de la zone HBS sur combustibles irradiés avant accident de type APRP ont de plus été confrontées aux simulations numériques

précédentes. Globalement ces résultats sont du même ordre de grandeur. Notons néanmoins que la pression moyenne des bulles HBS estimée avec ALCYONE-CARACAS se situe en borne inférieure des autres simulations numériques et des mesures expérimentales.

Connaissant les informations nécessaires et pertinentes pour générer nos VER de la zone HBS, la partie suivante présente les outils développés et/ou utilisés pour représenter géométriquement ces VERs, les valider et les discrétiser.

3.3 VER 3D de la zone HBS : Représentation - Validation

Dans cette partie nous présenterons tout d'abord le schéma de tirage choisi pour positionner les bulles HBS avec des diamètres différents dans une matrice homogène. Puis nous validons cet arrangement géométrique à l'aide d'un outil de caractérisation morphologique, la covariance. Nous présentons enfin les trois VER de la zone HBS sélectionnés pour réaliser nos études de localisation dans les chapitres 4 et 5. La discrétisation de ces VER sera exposée et réalisée au chapitre suivant.

3.3.1 Représentation géométrique de nos VER de la zone HBS - algorithme et outil utilisés

Le modèle d'absorption séquentielle aléatoire (RSA) est un processus stochastique, permettant de représenter l'évolution d'un domaine de dimension n dans lequel sont insérées des particules de manière séquentielle et aléatoire. Cette méthode de génération d'un ensemble aléatoire de particules a été utilisée dans de nombreux domaines scientifiques.

Il s'agit d'une méthode de type Monte-Carlo, qui consiste à placer les particules de rayon R_i les unes après les autres dans un volume fixe de côté l , jusqu'à obtenir la concentration de particules souhaitée et en imposant aux particules de ne pas s'interpénétrer. Les coordonnées des centres des particules sont tirées de manière aléatoire et uniforme. A chaque tirage, il est nécessaire de vérifier la condition de non interpénétration avec les particules précédemment placées. En cas d'interpénétration, le tirage de la particule est annulé et réitéré. Chaque particule placée correctement, est définitivement acceptée et sa position est fixée. Pour plus de détails, il est possible de se référer aux articles suivants traitant du RSA [Fed80, HFJ86, RT97, Wid66].

La fraction volumique maximale de particules que l'on peut atteindre selon cette méthode reste un problème ouvert en 2D et en 3D [Eva93, Tor02]. La recherche de cette valeur limite a été faite en 1D (génération aléatoire de segments de taille R dans un segment plus grand de taille l), 2D (génération de disques de rayon R dans un carré de côté l) et 3D (génération de sphères de rayon R dans un cube de côté l).

Pour notre étude 3D, les fractions volumiques limites estimées ne dépassent pas 20,% pour la zone HBS. Cette méthode assure une distribution statistiquement isotrope des particules [RT97].

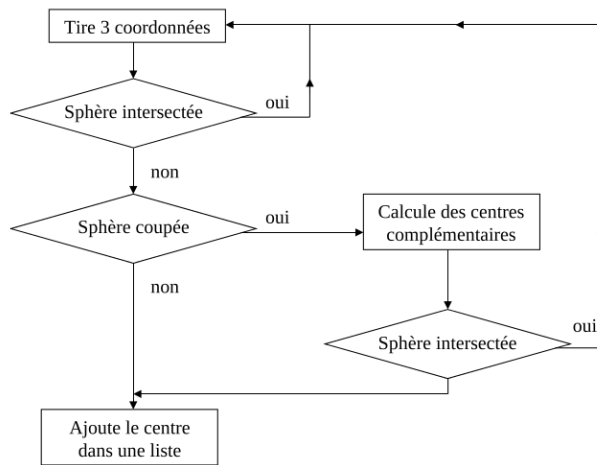
3.3.1.1 Algorithme de tirage

Ce modèle prend en entrée le diamètre des bulles et la fraction volumique des bulles par classe diamétrale, ainsi que la distance des répulsions (distance minimum entre les bulles). Les coordonnées des centres sont tirées aléatoirement et uniformément. La non interpénétration est vérifiée à chaque tirage avec la particule nouvellement placée. On utilisera ici les algorithmes de tirage développée en Python([<http://www.python.org>]) au cours de la thèse de R.Largenton [Lar11] et de V.Blanc [Bla09]. Le tirage est effectué en incluant une condition de périodicité géométrique de la microstructure. C'est à dire que les particules coupées par une face, une arête ou un sommet du cube ainsi que les parties reproduites par périodicité doivent n'intercepter aucune autre sphère tirée préalablement. Si une

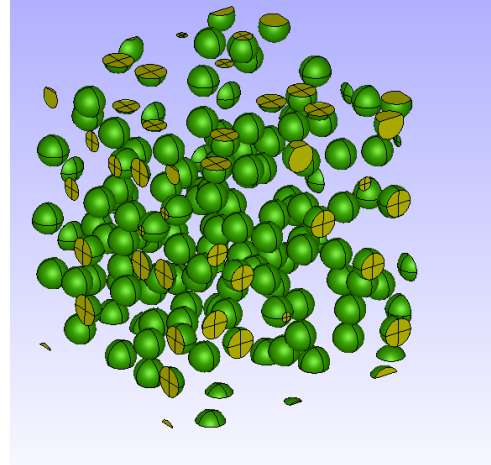
sphère doit en intercepter une autre, alors la sphère est rejetée et un nouveau centre est tiré avant de remplacer la sphère. Il est nécessaire de calculer les centres complémentaires de ces sphères reproduites par périodicité afin d'assurer la condition de non interpénétration. L'algorithme de tirage est schématisé figure 3.19. Ici un exemple est donné représentant une fraction volumique de bulles HBS cumulée de 9,01 % avec trois classes diamétrales de bulles :

- diamètre $0.8 \mu\text{m}$ dont la fraction volumique est égale à $x \%$.
- diamètre de $1 \mu\text{m}$ dont la fraction volumique est égale à $y \%$.
- diamètre de $1.2 \mu\text{m}$ dont la fraction volumique est égale $z \%$

Les valeurs x,y,z ne pouvant pas être divulguées pour des raisons de confidentialité.



(a) Algorithme RSA périodique [Lar11], [Bla09]



(b) Exemple de tirage sur un fuseau pastille $10 \mu\text{m}$ monodisperse

FIGURE 3.19 – Module de tirage effectuant la représentation géométrique périodique en 3D de la zone HBS.

3.3.1.2 Adaptation du spectre diamétral des bulles HBS pour générer nos VER de la zone HBS

Dans la partie 3.2 deux types de combustibles irradiés à fort taux de combustion ont été caractérisés expérimentalement :

- pastilles irradiées en Réacteur industriel.
- disques irradiés en Réacteur Expérimental.

Parmi ces caractérisations, les analyses au MEB nous ont permis d'obtenir le fuseau diamétral de porosités HBS pour chaque combustible (cf figure 3.15). Grâce à ces mesures expérimentales nous connaissons également la fraction volumique des porosités HBS par classe diamétrale. Sur la figure 3.15 nous remarquons que les deux fuseaux présentent une forme gaussienne.

Par ailleurs, pour les deux fuseaux, il existe un facteur de taille important (rapport 20) entre la plus petite et la plus grande porosité : il est donc impossible de représenter toutes les classes diamétrales de porosités HBS sans engendrer un effet d'échelle. Pour les besoins de notre modélisation et pour respecter l'hypothèse de la séparation des échelles, chaque fuseau sera écrêté et recentré sur la classe la plus représentée. De façon à toujours respecter la porosité totale, la fréquence de la classe éliminée sera additionnée à la classe retenue qui lui est la plus proche. Par exemple pour un fuseau écrêté entre 0.8 et $1.2 \mu\text{m}$, toutes les fréquences des classes supérieures auront été ajoutées à celle de la classe $1.2 \mu\text{m}$. De la même façon, toutes les fréquences des classes inférieures à celles de la classe $0.8 \mu\text{m}$

auront été ajoutées à celle-ci. Dans notre cas d'étude et pour la pastille irradiée en REP industriel, nous choisissons le fuseau comportant trois diamètres de bulles 0.8, 1 et 1.2 μm . Le fuseau écrêté qui servira de données d'entrée pour générer notre VER de la zone HBS de la pastille irradiée en REP industriel est exposé sur la figure 3.20 en bleu. Ce VER sera nommé VER pastille polydisperse.

Par ailleurs, pour nos études de localisation et de sensibilité à la microstructure, études exposées dans les chapitres suivants, nous utiliserons qu'une seule taille de porosité HBS (diamètre moyen retenu : 1 micromètre) pour générer un deuxième VER de la zone HBS de la pastille irradiée en REP industriel. Ce VER sera nommé VER pastille monodisperse. Dans le cas des disques, le fuseau écrêté qui servira de données d'entrée pour générer notre VER de la zone HBS du disque irradié en réacteur expérimental est exposé sur la figure 3.20 en rouge. Ce VER sera nommé VER disque polydisperse.

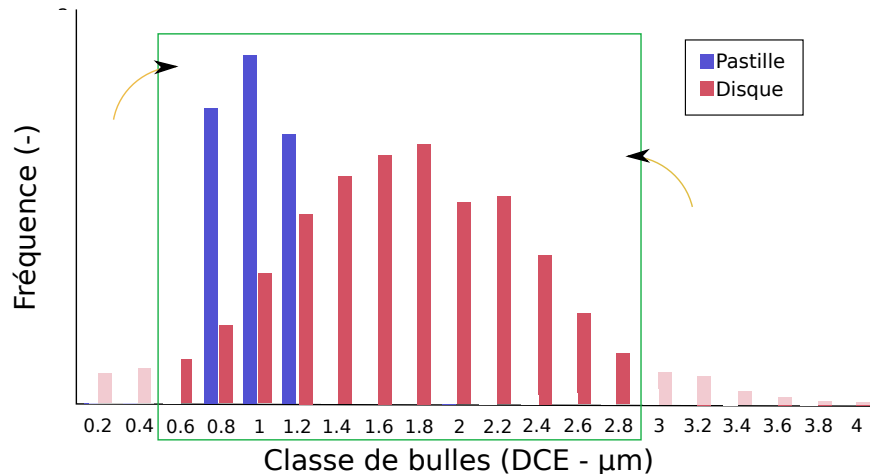


FIGURE 3.20 – Fuseau écrêté, en diamètre de bulles équivalentes, sur la répartition de bulles des pastilles irradiées en crayon

Pour chaque VER la distance minimale de répulsion entre les particules a été fixée sur la base des analyses du programme HBRP [BKTL03]. Pour des raisons de confidentialité, celle-ci ne peut pas être transmise. A partir de l'outil RSA développé par [Lar11] et des fuseaux de porosités HBS présentés précédemment, nous avons pu générer trois VER et ce pour des tailles caractéristiques différentes du VER. Nous rappelons que ces VER sont nommés :

- **VER pastille monodisperse** : Avec un seul diamètre de bulle de 1 μm représentant 9.01% de la fraction volumique.
- **VER pastille polydisperse**. Avec trois diamètres de bulles de 0.8, 1 et 1,2 μm , représentant 9.01 % de la fraction volumique cumulée.
- **VER disque polydisperse**. Avec douze diamètres de bulles entre 0.6 et 2.8 μm , pour une fraction volumique cumulée de 10.6 %.

La validation de la représentation géométrique de ces VER est réalisée grâce à un outil de caractérisation morphologique : la covariance. Son principe et la méthode de validation sont exposés dans la partie suivante.

3.3.2 Validation géométrique de ces VER de la zone HBS

L'objectif de cette partie est de déterminer la taille caractéristique minimum du VER et ce dans l'objectif par la suite de réaliser les études de localisation sur ces VER discrétisés (cf chapitres 4 et 5).

3.3.2.1 Définition de la covariance

La caractérisation morphologique des échantillons a pour but :

- En premier lieu, de vérifier que les échantillons réalisés respectent les hypothèses sur la fraction volumique cumulée des inclusions, sur la fraction volumique de chaque classe diamétrale et sur la distribution spatiale des inclusions, notamment vérifie l'isotropie du volume.
- En second lieu, d'essayer d'établir des liens entre microstructure et comportement mécanique local en analysant d'éventuelles corrélations entre ses caractéristiques morphologiques et des caractéristiques statistiques des champs locaux.
- Enfin, d'alimenter le modèle de changement d'échelles de paramètres morphologiques plus fins que la fraction volumique.

La covariance prend en compte quatre notions essentielles qu'il est nécessaire de rappeler, à savoir la notion de loi spatiale, de stationnarité, d'ergodicité et de moments fonctionnels :

1. **Loi spatiale (fonction caractéristique)** : soit un ensemble aléatoire A de complémentaire A^c , la fonction caractéristique $I_A(\underline{x})$ de l'ensemble aléatoire A associée à chaque point de l'espace défini par la variable \underline{x} la valeur un lorsque celui-ci appartient à A et zéro lorsqu'il appartient à A^c :

$$\begin{cases} I_A(\underline{x}) = 1 & \text{si } \underline{x} \in A \\ I_A(\underline{x}) = 0 & \text{si } \underline{x} \notin A \end{cases} \quad (3.31)$$

Soient $(\underline{x}_1, \dots, \underline{x}_k)$ et $(\underline{z}_1, \dots, \underline{z}_{k'})$ deux groupes de k et k' points de l'espace \mathfrak{R}^d où d est la dimension. Soit $P(\underline{x}_1, \dots, \underline{x}_k; \underline{z}_1, \dots, \underline{z}_{k'})$ la probabilité pour que l'ensemble des points \underline{x}_i appartiennent à A et \underline{z}_j appartiennent à A^c . La loi spatiale de l'ensemble A est l'ensemble de toutes les fonctions P pour tous les entiers k et k' et tous les systèmes de points $\underline{x}_1, \dots, \underline{x}_k$ et $\underline{z}_1, \dots, \underline{z}_{k'}$:

$$P(\underline{x}_1, \dots, \underline{x}_k; \underline{z}_1, \dots, \underline{z}_{k'}) = P(\underline{x}_1, \dots, \underline{x}_k \in A; \underline{z}_1, \dots, \underline{z}_{k'} \notin A) \quad (3.32)$$

On considère que l'ensemble aléatoire A est entièrement défini par la donnée de sa loi spatiale [Mat67].

2. **Stationnarité** : l'ensemble A est dit **stationnaire** si la loi spatiale est invariante par translation, c'est à dire si pour tout vecteur \underline{h} et tout groupe $(\underline{x}_1, \dots, \underline{x}_k)$ et $(\underline{z}_1, \dots, \underline{z}_{k'})$, on a :

$$P(\underline{x}_1 + \underline{h}, \dots, \underline{x}_k + \underline{h}; \underline{z}_1 + \underline{h}, \dots, \underline{z}_{k'} + \underline{h}) = P(\underline{x}_1, \dots, \underline{x}_k; \underline{z}_1, \dots, \underline{z}_{k'}) \quad (3.33)$$

3. **Ergodicité** : l'ensemble A est dit **ergodique** s'il y a égalité entre moyenne d'ensemble (l'espérance mathématique) et moyenne d'espace. En notant V_A la mesure de A dans un domaine D et V la mesure de D , on a :

$$E(I_A(\underline{x})) = \lim_{V_A, V \rightarrow \infty} \frac{V_A}{V} = \langle I_A(\underline{x}) \rangle_D \quad (3.34)$$

L'ergodicité traduit le fait que les propriétés moyennes d'un milieu ne dépendent pas de la taille de l'échantillon considéré.

4. **Moments fonctionnels** : le moment fonctionnel d'ordre k de l'ensemble aléatoire A correspond à la probabilité pour que les k points de l'espace tirés aléatoirement se trouvent dans la phase A , ce qui correspond à l'espérance mathématique du produit $I_A(\underline{x}_1) \dots I_A(\underline{x}_k)$:

$$\%P(\underline{x}_1, \dots, \underline{x}_k) = P(\underline{x}_1, \dots, \underline{x}_k \in A) = E(I_A(\underline{x}_1) \dots I_A(\underline{x}_k)) \quad (3.35)$$

Pour un ensemble A ergodique dans \mathfrak{R}^3 , le moment fonctionnel d'ordre un correspond d'après l'équation (3.34) à la fraction volumique de A dans D :

$$P(\underline{x}) = P(\underline{x} \in A) = E(I_A(\underline{x})) = \langle I_A(\underline{x}) \rangle_D = \frac{V_A}{V} \quad (3.36)$$

Si A est stationnaire, alors le moment d'ordre un est constant :

$$\forall \underline{h} \in \mathfrak{R}^d, \quad P(\underline{x} + \underline{h}) = P(\underline{x}) = f_{V_A} \quad (3.37)$$

Le moment d'ordre deux correspond à la covariance, que nous allons détailler dans le paragraphe suivant.

Nous pouvons donc maintenant définir la covariance.

Définition de la covariance : Soit un ensemble A stationnaire, inclus dans D , son moment d'ordre deux est donné par :

$$P(\underline{x}_1, \underline{x}_2) = \langle I_A(\underline{x}_1) I_A(\underline{x}_2) \rangle_D = \frac{1}{V} \int_D I_A(\underline{x}_1 + \underline{u}) I_A(\underline{x}_2 + \underline{u}) d\underline{u} \quad (3.38)$$

A étant stationnaire, cette fonction ne dépend que du vecteur $\underline{x}_2 - \underline{x}_1$, que l'on note \underline{h} pour la suite. La covariance $C(\underline{h})$ de A dans une direction de \underline{h} est donc donnée par :

$$\forall \underline{x} \in D, \quad A \subset D, \quad \underline{h} \in \mathfrak{R}^d : \quad C(\underline{h}) = P(\underline{x}, \underline{x} + \underline{h}) \quad (3.39)$$

Si A est ergodique, on peut remplacer les probabilités dans l'équation précédente par la mesure de l'intersection de A et de son translaté $A_{+\underline{h}}$:

$$\forall \underline{x} \in D, \quad A \subset D, \quad \underline{h} \in \mathfrak{R}^d : \quad C(\underline{h}) = \frac{\text{Mes}(A \cap A_{+\underline{h}})}{\text{Mes}(D)} \quad (3.40)$$

Dans le cas d'une phase A répartie dans la structure D selon une fonction aléatoire stationnaire, la covariance ne dépend pas de la position considérée dans la structure et se note $C(\underline{h})$.

Le covariogramme $K(\underline{h})$ est une notion très proche de la covariance, il correspond à la mesure de l'intersection de A avec $A_{+\underline{h}}$ pour toutes les valeurs de \underline{h} :

$$A \subset D, \quad \underline{h} \in \mathfrak{R}^{d+} : \quad K(\underline{h}) = \text{Mes}(A \cap A_{+\underline{h}}) \quad (3.41)$$

Covariance et covariogramme sont donc liés par la relation suivante :

$$C(\underline{h}) = \frac{K(\underline{h})}{\text{Mes}(D)} \quad (3.42)$$

La covariance est un outil morphologique qui a de multiples applications, en analyse d'images, en géostatistique ou en homogénéisation. Il est important de noter que la covariance, ainsi que le covariogramme, s'appliquent aux structures stationnaires [Mat67]. Elle possède les propriétés suivantes :

1. La covariance de l'ensemble A pour un vecteur \underline{h} nul est égale à la fraction volumique de A :

$$C(0) = P(\underline{x}, \underline{x}) = f_{V_A} \quad (3.43)$$

avec f_{V_A} la fraction volumique de A dans D .

2. La covariance d'un ensemble A non fini dans l'espace tend vers le carré de sa fraction volumique :

$$\lim_{\|\underline{h}\| \rightarrow \infty} C(\underline{h}) = \lim_{\|\underline{h}\| \rightarrow \infty} P(\underline{x}, \underline{x} + \underline{h}) = P(\underline{x})P(\underline{x}) = f_{V_A}^2 \quad (3.44)$$

Quand le vecteur \underline{h} est très grand, les points \underline{x} et $\underline{x} + \underline{h}$ ne sont plus corrélés. La probabilité que ces deux points appartiennent simultanément à A correspond donc au produit des probabilités, qui est égal à la fraction volumique au carré.

3. Dans le cas où A est fini, il existe un réel L tel que pour $\|\underline{h}\|$ supérieure à L la covariance $C(\underline{h})$ soit nulle :

$$\exists L \in \mathbb{R}^+ / \forall \underline{h} \in \mathbb{R}^{d+}, \|\underline{h}\| > L \Rightarrow C(\underline{h}) = 0 \quad (3.45)$$

L est alors la distance maximale séparant deux points appartenant à la phase A dans la direction du vecteur de translation.

4. La covariance est une fonction paire :

$$\text{Mes}(A \cap A_{+\underline{h}}) = \text{Mes}(A_{-\underline{h}} \cap A) \Leftrightarrow C(\underline{h}) = C(-\underline{h}) \quad (3.46)$$

5. Les inflexions de la courbe de covariance témoignent de la présence de plusieurs échelles au sein de la phase A .
6. La périodicité de la covariance témoigne d'une structure périodique dans la direction considérée. La période de la covariance est celle de la structure.
7. L'anisotropie de la répartition de la phase peut être observée en comparant les courbes de covariance mesurées dans différentes directions du vecteur \underline{h} .

3.3.2.2 Étude de la covariance sur les VER sélectionnés

Pour chaque VER nous cherchons la taille caractéristique minimale pour laquelle le milieu est stationnaire. L'outil développé calcule la fonction distance dans les trois directions de l'espace pour différentes tailles de VER. Les courbes 3.21, 3.22, 3.23, présentent respectivement les covariances pour le VER pastille monodisperse (une classe de bulles), VER pastille polydisperse (trois classes de bulles) et le VER disque polydisperse (douze classes de bulles). La covariance est tracée sur la demi longueur du VER étudié. Quels que soient les VER étudiés (VER pastille mono ou polydisperse, VER disque polydisperse), la covariance converge du point de vue géométrique pour une dimension caractéristique minimale de VER : $L = 9 \mu\text{m}$.

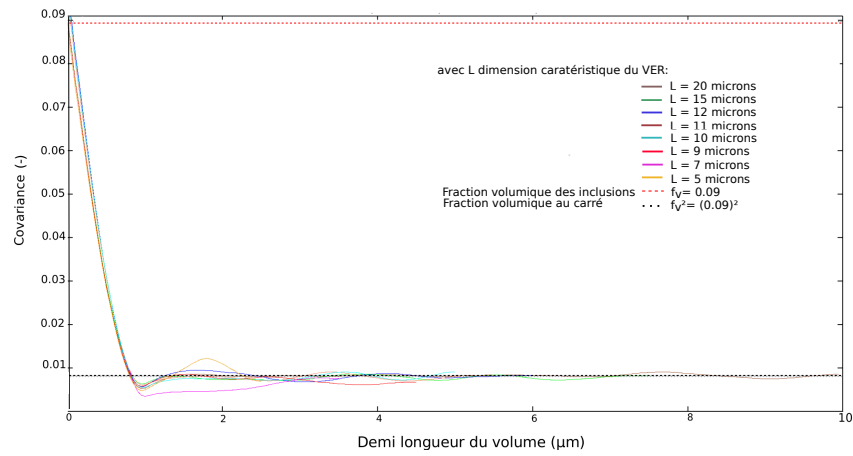


FIGURE 3.21 – Covariance du VER pastille monodisperse - 8 tailles caractéristiques de VER (L) testées

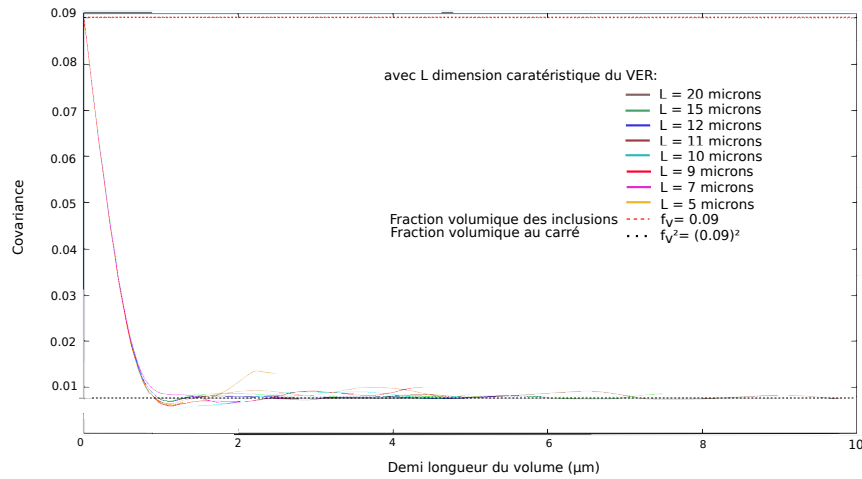


FIGURE 3.22 – Covariance du VER pastille polydisperse - 8 tailles caractéristiques de VER (L) testées

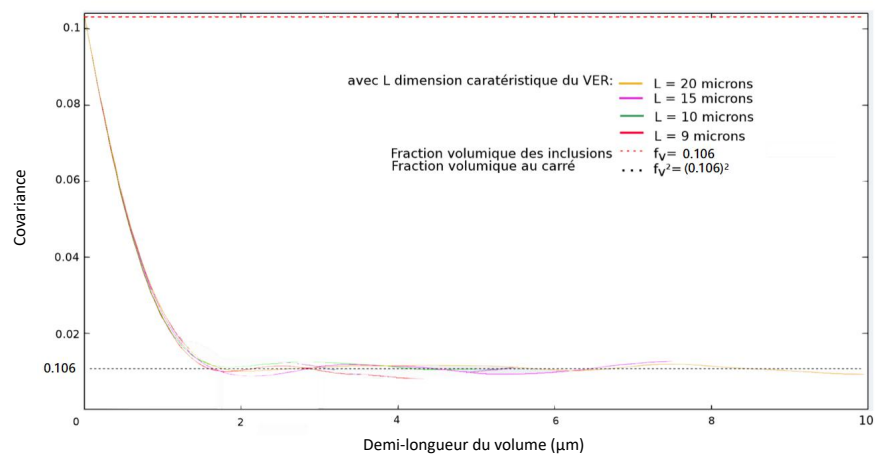


FIGURE 3.23 – Covariance du VER disque polydisperse - 4 tailles caractéristiques de VER (L) testées

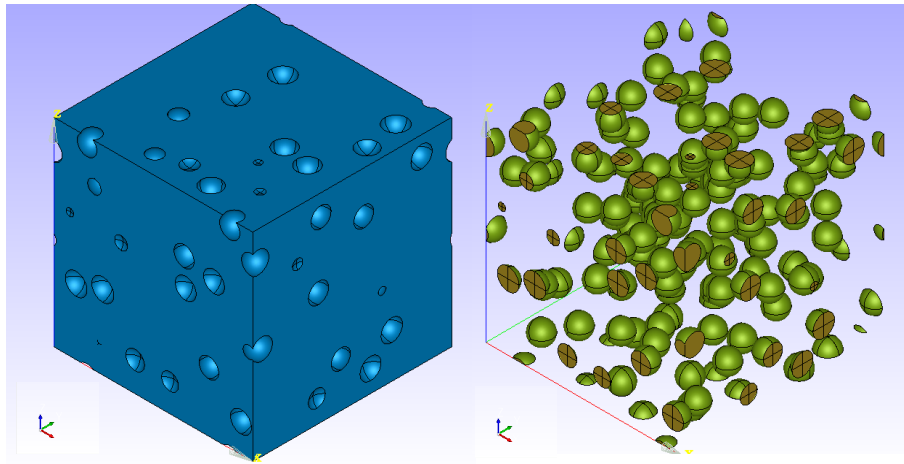
Pour chaque VER et chaque taille caractéristique de VER, nous prêtons attention à :

- **la valeur de la covariance à l'origine.** Rappelons qu'à distance nulle la covariance correspond à la fraction volumique cumulée de la phase inclusionnaire analysée. Cette hypothèse est bien vérifiée sur chaque VER (VER pastille mono et polydisperse, VER disque polydisperse) et chaque dimension testée de VER ($L = 5$ à $20 \mu\text{m}$).

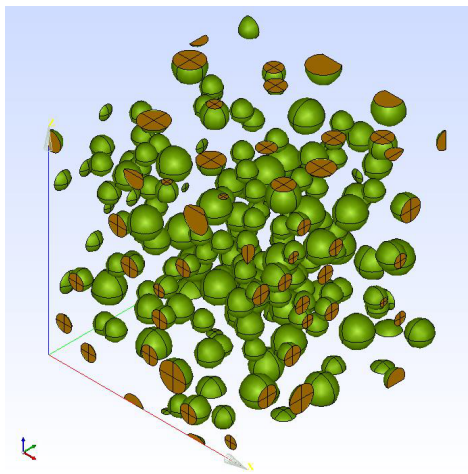
- **l'absence d'inflexion.** Pour les VER dont la taille caractéristique est suffisante pour assurer la convergence géométrique nous notons l'absence d'inflexion des courbes de covariance. Cela confirme l'absence de plusieurs échelles, c'est à dire l'absence de bulles HBS regroupées en amas de bulles, ce qui est conforme au schéma de tirage utilisé : schéma RSA. Si nous analysons les image MEB (cf figure 3.12) des zone HBS, qualitativement nous aurions tendance à confirmer qu'il n'y a pas de regroupement de bulles en amas de bulles. Cependant, à l'avenir il serait intéressant sur ces images expérimentales d'appliquer la fonction radiale de distribution (un autre outil de caractérisation morphologique) pour vérifier ou contredire cette affirmation.

- **la portée.** Pour les VER dont la taille caractéristique est suffisante pour assurer la convergence géométrique nous étudions également **la portée** : il s'agit de l'abscisse, où pour la première fois, la courbe covariance coupe l'asymptote correspondant au carré de la fraction volumique. La portée correspond à la taille moyenne des inclusions étudiées. Sur le VER pastille monodisperse (cf 3.21) où la convergence géométrique de la covariance est assurée (Dimension caractéristique minimale du VER : $L \geq 9 \mu\text{m}$), la portée vaut $1 \mu\text{m}$. Ce VER ne comportant qu'une classe d'inclusions (diamètre des bulles = 1 micromètre), cette valeur était attendue. Pour les VER pastille polydisperse (cf 3.22) où la convergence géométrique de la covariance est assurée (Dimension caractéristique minimale du VER : $L \geq 9 \mu\text{m}$) la valeur de la portée est identique. Cette valeur est en parfaite adéquation avec le diamètre moyen des bulles constituant ces VER. Pour les VER disque polydisperse (cf 3.23) où la convergence géométrique de la covariance est assurée (Dimension caractéristique minimale du VER : $L \geq 9 \mu\text{m}$), la portée de la covariance vaut entre 1.8 et $2 \mu\text{m}$. Cette valeur est très proche du diamètre moyen des bulles constituant ces VER.

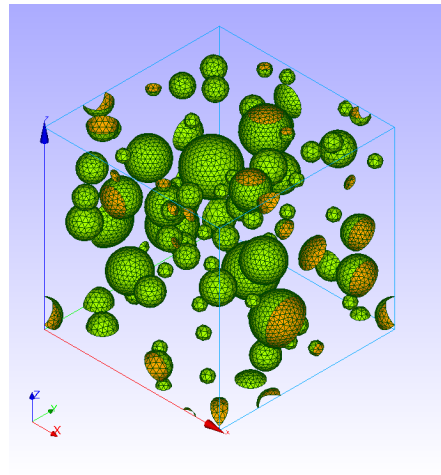
Finalement quels que soient les VER étudiés (VER pastille mono ou polydisperse, VER disque polydisperse), la convergence géométrique de la covariance nous a permis de définir une dimension caractéristique minimale pour nos trois VER (VER pastille mono ou polydisperse, VER disque polydisperse) : **$L = 9 \mu\text{m}$** . Ces VER exposés sur les figures ci-dessous 3.24, seront utilisés dans les chapitres suivants pour les études de localisation, chapitre 4 et 5.



(a) VER pastille monodisperse



(b) VER pastille polydisperse



(c) VER disque polydisperse

FIGURE 3.24 – Exemple de VER pour les trois microstructures représentant la zone HBS d'un combustible UO_2 - Longueur caractéristique de $9\mu m$.

Il est néanmoins important de rappeler que cette taille minimale n'assure la convergence que du point de vue de la géométrie et pas du point de vue des mécanismes et des phénomènes modélisés dans les chapitres suivants. En toute rigueur, il aurait fallu rejouer ces études de covariances dans les chapitres suivants. Faute de temps nous avons considéré que cette dimension caractéristique de nos VER était suffisante pour les études de localisation.

Sur le VER pastille polydisperse de dimension caractéristique, $L=9\mu m$, nous avons également mené une étude de la covariance sur vingt tirages : chaque tirage possédant en donnée d'entrée. Le même fuseau diamétral des bulles HBS et la même fraction volumique par classe diamétral de bulles (cf 3.20 fuseau bleu). Les résultats sont exposés sur la figure 3.25. Nous remarquons que les covariances de tous les tirages sont de formes quasi similaires. Par ailleurs, on notera que la portée se situe entre 0.8 et $1.1\mu m$, ce qui encadre la valeur moyenne des bulles HBS de ce fuseau de bulles. Ces VER serviront dans le chapitre suivant pour étudier l'influence de la répartition des bulles HBS dans le VER sur les champs locaux : par exemple les contraintes principales.

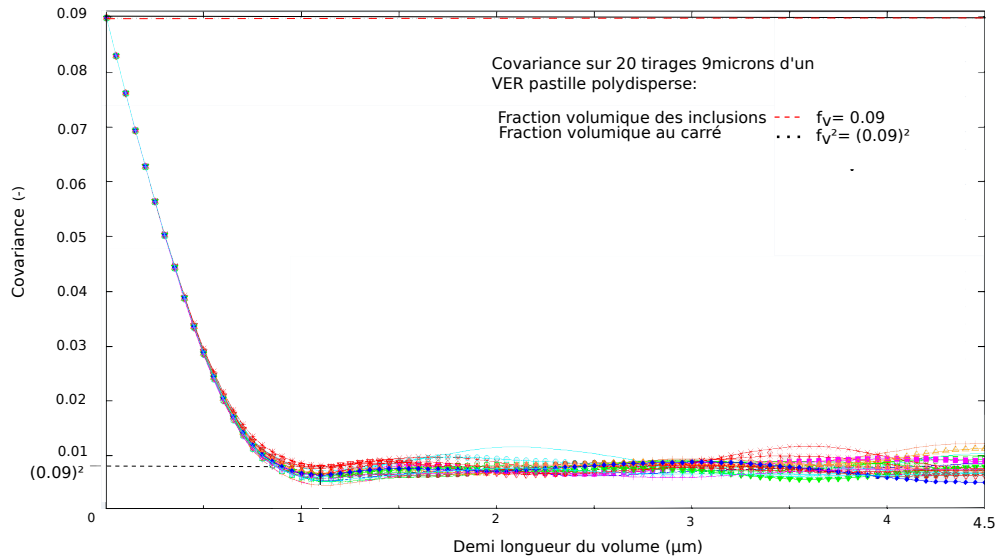


FIGURE 3.25 – Covariance sur 20 tirages $9\ \mu\text{m}$ du VER pastille polydisperse. Dimensions caractéristiques $L = 9\ \mu\text{m}$.

3.4 Conclusion du chapitre

Pour construire notre modèle de rupture basé sur une méthode micromécanique, la première étape de ce travail de thèse était la représentation de la microstructure HBS. Dans ce chapitre, nous avons donc décrit la méthodologie et les outils pour représenter géométriquement et numériquement le combustible HBS en 3D en réalisant :

1. **La collecte des données sur les bulles HBS.** Deux méthodes ont été présentées :
 - **la simulation numérique** qui permet, via le code de simulation du comportement thermo-mécanique du crayon combustible ALCYONE-CARACAS, d'obtenir une taille moyenne des bulles HBS, la fraction volumique moyenne associée et la pression dans ces bulles, et ce pour chaque instant du transitoire thermique.
 - **l'approche expérimentale** qui rend compte des mesures du fuseau diamétral de bulles HBS, de leur fraction volumique respective ainsi que leur contenu gazeux. La pression dans les bulles HBS peut être évaluée à partir de loi d'état adéquate. Ces résultats donnent cependant l'état du combustible avant le transitoire thermique. Par ailleurs, les analyses expérimentales montrent l'influence des conditions d'irradiation sur la taille et la répartition des bulles HBS dans les pastilles ou les disques combustibles, irradiés respectivement en crayon REP ou en réacteur expérimental, à taux de combustion local équivalent.
2. **La génération du milieu et sa validation.**
 - Pour représenter géométriquement le milieu, un outil de génération de milieu hétérogène basé sur un schéma de tirage RSA, respectant les conditions de périodicité a été employé.
 - La validation géométrique a été réalisée à l'aide de la covariance. Cette analyse a permis de vérifier que les paramètres géométriques des tirages sont cohérents avec les hypothèses de la zone HBS (bulles isolées, diamètres moyens des bulles représentatifs ...).

De cette analyse, nous générons trois microstructures 3D, dans une matrice cubique de $9\ \mu\text{m}$ de côté, trois fuseaux différents de taille de bulles, représentant la zone HBS :

- VER pastille monodisperse : Avec un seul diamètre de bulle de $1\ \mu\text{m}$ représentant 9.01% de la fraction volumique.

- VER pastille polydisperse. Avec trois diamètres de bulles de 0.8, 1 et 1,2 μm , représentant 9,01 % de la fraction volumique cumulée.
- VER disque polydisperse. Avec des diamètres de bulles entre 0.6 et 2.8 μm , pour une fraction volumique cumulée de 10.6 %.

Chapitre 4

Analyse en champs complets avec comportement linéaire

L'objectif de ce chapitre est de présenter les calculs préliminaires de l'étape de localisation. Avant de réaliser des calculs en champs complets avec un comportement non linéaire (prenant en compte l'endommagement du combustible), la méthode multiéchelles est mise en place avec un comportement élastique de la matrice. Cette étape sert à déterminer le maillage de référence pour constituer notre VER qui possède une taille de maille « convergée », c'est à dire une taille de maille pour laquelle les résultats des calculs sont indépendants du maillage.

Dans une première partie, nous exposons l'étude de convergence au maillage et le choix des VERs pour les trois fuseaux HBS (fuseau monodisperse, fuseau disque polydisperse et fuseau pastille polydisperse). Par ailleurs, la distribution aléatoire des bulles dans le milieu est réalisée avec un algorithme de type RSA. Nous étudierons dans une seconde partie s'il existe une influence du tirage sur le champ de contrainte, à porosité et à fuseau de taille de bulles identiques.

4.1 Détermination d'un VER pour les fuseaux HBS par l'étude de convergence au maillage

La représentation géométrique de la zone HBS sur un volume cubique de côté de $9\mu\text{m}$ a été validée lors du chapitre précédent. La dernière étape avant de passer aux calculs en champs complets consiste à discrétiser cette géométrie par un maillage qui servira pour les calculs éléments finis. Le paragraphe suivant décrit la méthode employée.

4.1.1 Procédure de maillage

Les maillages 3D sont effectués à partir des outils initialement développés pour les combustibles à particules des réacteurs HTR (combustibles UO_2 conditionnés en billes sphériques comportant une « écorce », revêtement graphite-Sic). Ces outils ont été développés dans la thèse de V.Blanc [Bla09] puis ont été adaptés par la suite aux combustibles MOX (céramique à deux phases inclusionnaires) dans la thèse de R.Largenton [Lar11].

La procédure de maillage, initialement proposée par l'équipe SALOME [sal18], s'appuie sur la procédure NETGEN2 [<http://www.hpfem.jku.at/netgen/>]. Elle est basée sur les modules Geom et Mesh et permet d'imposer la périodicité du maillage. Son utilisation est nécessaire pour traiter des hétérogénéités fermées dans une matrice (car ce cas ne peut être traité par le mailleur de Cast3M). Cette procédure est donc adaptée pour mailler la zone HBS (avec une phase inclusionnaire : bulle HBS). Le schéma 4.1 donne la démarche suivie pour réaliser le maillage.

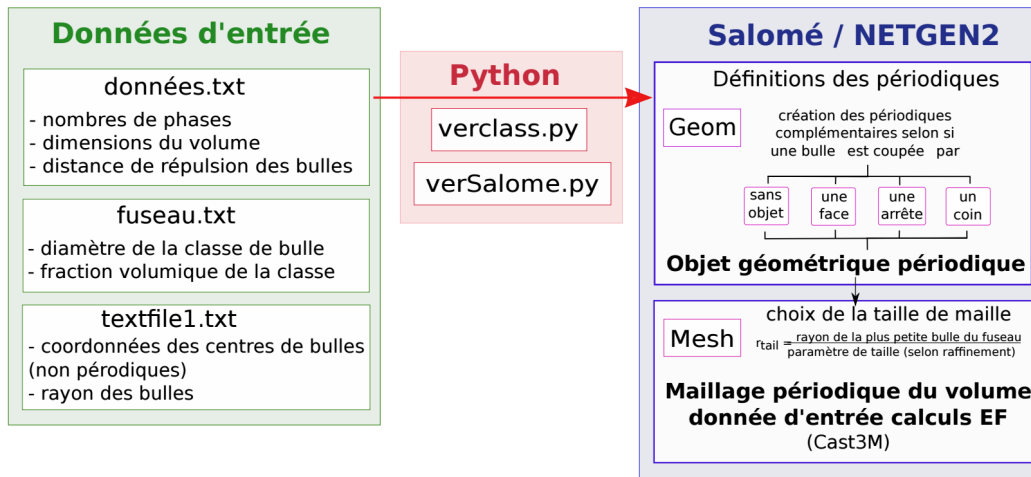


FIGURE 4.1 – Procédure de maillage utilisant les outils de l'équipe SALOME

Les données d'entrées de la procédure de maillage sont constituées des informations géométriques sur les bulles HBS issues du chapitre précédent (le fuseau de classes de bulles, le taux de porosité de chaque classe) ainsi que les coordonnées des centres et le rayon des bulles issues du tirage RSA. Les deux scripts python **verclass.py** et **verSalome.py** permettent la génération d'un maillage périodique via le logiciel Salome. Un paramètre *r_{tail}* du fichier *verSalomé* permet d'ajuster la taille de maille. Celle-ci est calculée à partir du rayon de la plus petite inclusion présente dans le volume, divisé par le paramètre *r_{tail}*.

Avant de mailler, la première étape est de rendre le VER périodique. Un premier test est effectué pour chaque bulle afin de définir si :

- la bulle est incluse totalement dans le VER ;
- la bulle intercepte une face, est coupée par une arête ou se situe à un coin du VER.

Dans le second cas, la partie de la bulle non incluse dans le VER doit être repositionnée par périodicité. Le script permet de construire le complémentaire de la bulle par périodicité, après avoir calculer les coordonnées de son centre de façon périodique pour reconstituer la bulle entière par symétrie. Ainsi les faces opposées du volume se correspondent périodiquement deux à deux (géométrie et maillage périodiques). De cette façon, la fraction volumique de porosité d'origine est conservée dans le VER périodique final. Le maillage est réalisé d'abord dans les bulles puis dans la matrice.

Le paragraphe suivant décrit plus précisément comment les conditions périodiques sont appliquées.

4.1.2 Écriture des conditions de périodicité

Étant donnée l'hypothèse de périodicité, le déplacement peut se mettre pour chaque nœud \mathbf{x} (x_1, x_2, x_3) sous la forme : $\mathbf{u}(\mathbf{x}) = \mathbf{E}\mathbf{x} = \mathbf{u}^\#(\mathbf{x})$ où \mathbf{E} est la déformation moyenne du VER et $\mathbf{u}^\#$ le déplacement périodique. Si $\mathbf{x}^m = (x_1^m, x_2^m, x_3^m)$ et $\mathbf{x}^n = (x_1^n, x_2^n, x_3^n)$ sont deux nœuds en vis à vis sur les frontières du maillage, les conditions de périodicité pour ces deux nœuds peuvent alors s'écrire [SO06] :

$$\mathbf{E} \cdot \mathbf{x}^m - \mathbf{u}(\mathbf{x}^m) = \mathbf{E} \cdot \mathbf{x}^n - \mathbf{u}(\mathbf{x}^n). \quad (4.1)$$

Ce qui nous permet d'écrire la différence de déplacement des nœuds m et n associé à la déformation moyenne \mathbf{E} imposée sous la forme :

$$\Delta \mathbf{U} = \mathbf{u}(\mathbf{x}^m) - \mathbf{u}(\mathbf{x}^n) = \mathbf{E} \cdot (\mathbf{x}^m - \mathbf{x}^n). \quad (4.2)$$

Soit, en développant :

$$\begin{aligned}\Delta U_1 &= E_{11}\Delta x_1 + E_{12}\Delta x_2 + E_{13}\Delta x_3. \\ \Delta U_2 &= E_{21}\Delta x_1 + E_{22}\Delta x_2 + E_{23}\Delta x_3. \\ \Delta U_3 &= E_{31}\Delta x_1 + E_{32}\Delta x_2 + E_{33}\Delta x_3.\end{aligned}$$

Cette relation exprime la condition de périodicité comme une équation linéaire entre degrés de liberté, que les codes de calculs peuvent traiter par la méthode des multiplicateurs de Lagrange. La méthode de construction du VER impose de tenir compte des directions de périodicité : dans le cas où la géométrie est cubique, 3 directions suffisent. Comme dans notre cas certaines bulles sont coupées, il peut y avoir jusqu'à 13 directions pour les relations de périodicité.

Utilisation de nœuds fictifs

Pour appliquer les conditions de périodicité on utilise un couple de nœuds fictifs P et P', nœuds n'appartenant pas au VER. Les nœuds fictifs permettent d'appliquer indifféremment des CL en déformations ou contraintes macroscopiques en utilisant respectivement les déplacements ou les forces associés à ces mêmes nœuds P et P'.

$$U_i(P) = E_{ii} \quad \text{et} \quad U_i(P') = E_{ij},$$

pour i et j prenant les valeurs entre 1 et 3 correspondant à chaque direction du repère. Dans la pratique, nous utilisons des nœuds fictifs à l'extérieur du VER avec les coordonnées ci-dessous :

$$P = (10d_{ver}, 0, 10d_{ver}) \quad \text{et} \quad P' = (10d_{VER}, 10d_{VER}, 10d_{ver}),$$

où d_{VER} est la dimension du VER.

Les conditions de périodicité sont appliquées à l'aide de l'opérateur 'RELA' [cas03],[cas90], de Cast3m qui permet d'imposer des relations sur les degrés de liberté des nœuds sur deux maillages linéiques ou surfaciques.

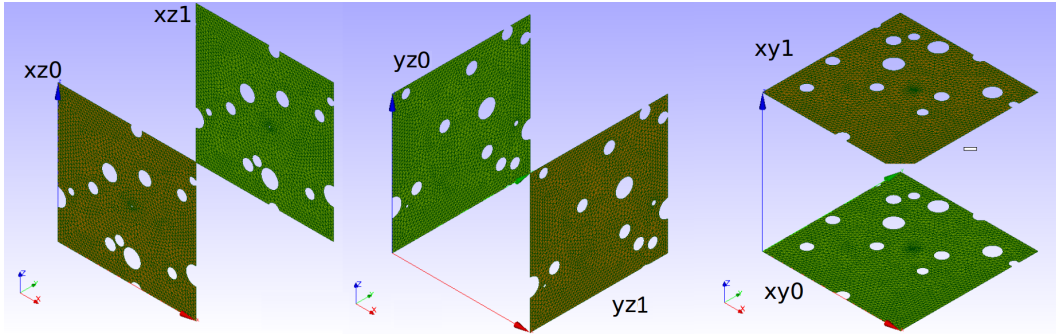


FIGURE 4.2 – faces périodiques d'un fuseau pastille polydisperse.

La figure 4.2 montre les faces périodiques d'un tirage avec un fuseau polydisperse. Par exemple pour les faces en yz, il faut imposer aux nœuds en vis à vis les conditions :

$$\begin{aligned}U_x(P) &= u_x(yz1) - u_x(yz0) \\ U_x(P') &= u_y(yz1) - u_y(yz0) \\ U_y(P') &= u_z(yz1) - u_z(yz0)\end{aligned}$$

et ce respectivement sur les deux autres couples de faces xz et xy.

L'application des conditions de périodicité n'est possible que si les faces du volume élémentaire se correspondent en géométrie (positionnement des bulles sectionnées par les faces du cube) et par le maillage (correspondance des nœuds par les relations de périodicité).

Bilan : hypothèses des maillages pour la zone HBS

Pour cette étude, nous choisissons les hypothèses qui seront appliquées à tous les maillages réalisés par la suite :

- le volume ne comporte qu'une seule phase hétérogénéité : les bulles HBS ;
- les bulles sont tirées dans une matrice homogène ;
- les bulles sont maillées (maillage volumique) ;
- le maillage est réalisé avec des éléments tétraédriques pour les éléments volumiques et triangles pour les éléments surfaciques ;
- le maillage est périodique respectant les conditions de périodicité décrites dans le paragraphe précédent. 4.1.2.

Le maillage final est exporté au format « med ». Ce format a été préféré car il permet la concordance de la numérotation des éléments entre Salomé et Cast3M.

4.1.3 Calculs linéaires pour la convergence au maillage

4.1.3.1 Le problème mécanique élastique

Les calculs suivants sont réalisés avec des conditions aux limites périodiques. On cherche la réponse de la matrice au chargement en pression des bulles via la loi de Hooke : $\sigma = \mathbf{C} : \varepsilon$. Dans le cas d'une matrice isotrope, le problème devient :

$$\begin{cases} \operatorname{div} \sigma = 0, \text{ dans } V, \\ \sigma = \frac{E}{1+\nu} \left(\varepsilon + \frac{\nu}{1-2\nu} \operatorname{Tr}(\varepsilon) \mathbf{I} \right), \text{ dans } V, \\ \sigma \cdot \mathbf{n} = -\mathbf{p} \text{ sur } \partial T, \\ \sigma \# \text{ et } u - \# \text{ sur } \partial V, \end{cases} \quad (4.3)$$

avec E , le module d'Young, ν , le coefficient de Poisson, V le volume du VER et T , les hétérogénéités.

Les propriétés matériaux du tableau 4.1 sont appliquées tout au long de ce chapitre : les bulles sont laissées creuses. Les contraintes macroscopiques sont nulles sur les bords du VER. La pression est appliquée à la surface interne des bulles. Les calculs, sont réalisés avec le code éléments finis Cast3M [cas90].

Matériau bulles	Matériau matrice UO_2	Chargement	Pilotage	Conditions limites
aucun bulles creuses	$E_{UO_2} = 200 \text{ GPa}$ $\nu_{UO_2} = 0.3$	pression dans les bulles	chargement en effort	périodiques déformations libres

TABLE 4.1 – Paramétrage des propriétés matériaux et pilotage commun aux calculs élastiques pour les études de convergence.

Avant de passer à l'étude de convergence, nous déterminons quels types d'éléments il est nécessaire d'utiliser : quadratiques ou linéaires. Les éléments quadratiques possèdent plus de nœuds donc les résultats sont souvent plus précis que pour les éléments linéaires. Cependant, ils sont plus coûteux en temps de calcul et capacité mémoire (de part l'augmentation du nombre de degrés de liberté à calculer), il convient d'évaluer la nécessité de les employer ou non.

4.1.3.2 Choix d'éléments linéaires ou quadratiques pour les calculs élastiques

Pour quantifier l'apport des éléments quadratiques sur l'utilisation des linéaires, nous analysons un cas simple dans lequel une bulle unique, placée au centre d'une matrice cubique de $1 \mu\text{m}$ de côté, est mise sous pression. Nous comparons la valeur des contraintes radiales à la solution analytique de la sphère creuse soumise à une pression interne dans un milieu continu, homogène et isotrope dans les deux cas, sur un maillage identique. La bulle est chargée de 0 à 300 MPa et mesure $0,3 \mu\text{m}$ de rayon.

Résolution analytique d'une enveloppe sphérique soumise à une pression interne

Cette partie rappelle la solution analytique dans la une bulle en milieu homogène isotrope élastique.

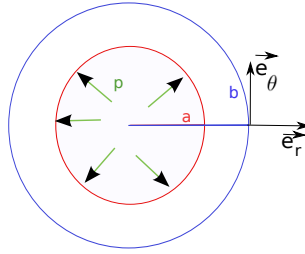


FIGURE 4.3 – Problème de la sphère sous pression interne [Cou]

Le problème à une symétrie sphérique. Les équations d'équilibre se réduisent à :

$$\frac{d\sigma_{rr}}{dr} + \frac{2}{r}(\sigma_{rr} - \sigma_{\theta\theta}) = 0; \quad (4.4)$$

dans le système de coordonnées sphérique (r, θ, φ) . Les conditions aux limites sont :

$$\sigma_{rr}|_{(r=a)} = -p \text{ et } \sigma_{rr}|_{(r=b)} = 0.$$

Avec la loi de Hooke et l'expression des déformations en fonction des déplacements, on obtient l'équation différentielle suivante :

$$\frac{d^2 u_r}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{du_r}{dr} - \frac{2}{r^2} u_r = 0; \quad (4.5)$$

ayant pour solution u_r ;

$$u_r = C_1 r + \frac{C_2}{r^2}. \quad (4.6)$$

avec C_1 et C_2 , deux constantes à déterminer à partir des conditions aux limites. Finalement,

$$\sigma_{rr} = -\frac{a^3}{b^3 - a^3} \left[\frac{b^3}{r^3} - 1 \right] p. \quad (4.7)$$

Dans notre cas, a est le rayon de la bulle = $0.3 \mu\text{m}$; b , la dimension du VER = $1 \mu\text{m}$; p , la pression interne = 300 MPa. La figure 4.4 donne un exemple de tétraèdre linéaire et quadratique avec ses fonctions de formes associées à chaque nœuds.

Réponse d'un chargement de pression sur une bulle unique sur un maillage à éléments linéaires et quadratiques

Les éléments choisis sont des tétraèdres possédant 4 ou 10 nœuds pour respectivement 1 et 4 points d'intégration 4.4. Le tableau 4.2 donne les caractéristiques du maillage et de la géométrie utilisés ici. La bulle est chargée avec une pression allant de 0 à 300 MPa. Les conditions aux limites périodiques sont appliquées et les bords du volume sont libres.

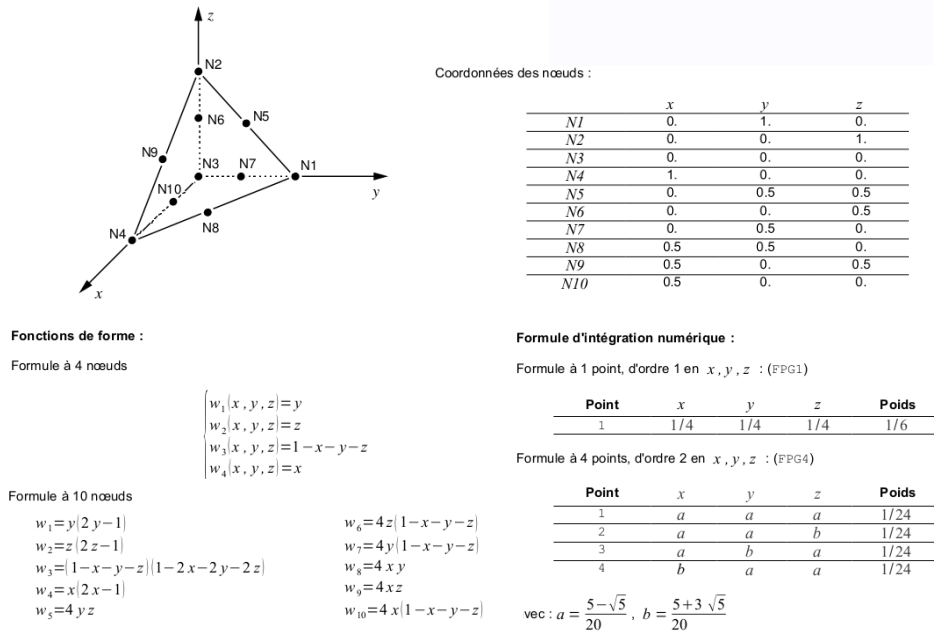


FIGURE 4.4 – Exemple de tétraèdres 4 et 10 noeuds avec fonction de formes et fonction d'intégration à 1 et 4 points (linéaire et quadratique)[J.13].

Maillage	Coté cube	F _v bulle	Éléments	Noeuds lin.	Noeuds quad.	maille (μm)
une bulle	1 μm	10%	28 573	6 033	41 0783	[0.035 - 0.12]

TABLE 4.2 – Caractéristiques du maillage pour l'étude de la bulle unique dans un volume cubique.

Les résultats de ces calculs sont présentés dans les figures 4.5 et 4.6.

- La figure 4.5 montre l'état des contraintes principales max à la surface de la sphère au chargement final de pression. La valeur analytique attendue de -300 MPa pour la contrainte n'est pas atteinte dans tous les éléments. De plus cette valeur de contrainte n'est pas homogène dans le cas des éléments linéaires. Pour les éléments quadratiques, les résultats sont plus homogènes et les valeurs de contraintes sont très proches de -300 MPa à proximité de la surface de la bulle.
- Dans un second temps, nous comparons les résultats aux points d'intégration par rapport à la solution analytique présentés sur la figure 4.6. Dans le cas linéaire, les valeurs de contraintes sont très dispersées. Ce résultat met en évidence un problème d'effet mosaïque sur la solution éléments finis. Les résultats ici sont répartis entre -310 et -142 MPa à la surface de la bulle de 0.3 μm. Le large nuage de valeurs obtenu en linéaire entoure la solution analytique (courbe verte). Cependant, la dispersion reste importante dans tout le volume (environ 100 MPa) et ce jusqu'au bord du volume. Dans le cas quadratique, la valeur de -300 MPa est atteinte dans l'élément. Des écarts à la solution théorique sont constatés. Ils sont attribués aux fait que nous considérons deux géométries différentes : sphère creuse dans un milieu infini pour la solution analytique et sphère creuse dans un cube fini dans le calcul. De ce fait, il existe un effet de bord visible aux abscisses 0.5 μm, correspondant aux faces du cube, et à 0.707 μm, correspondant à la diagonale coin du cube.

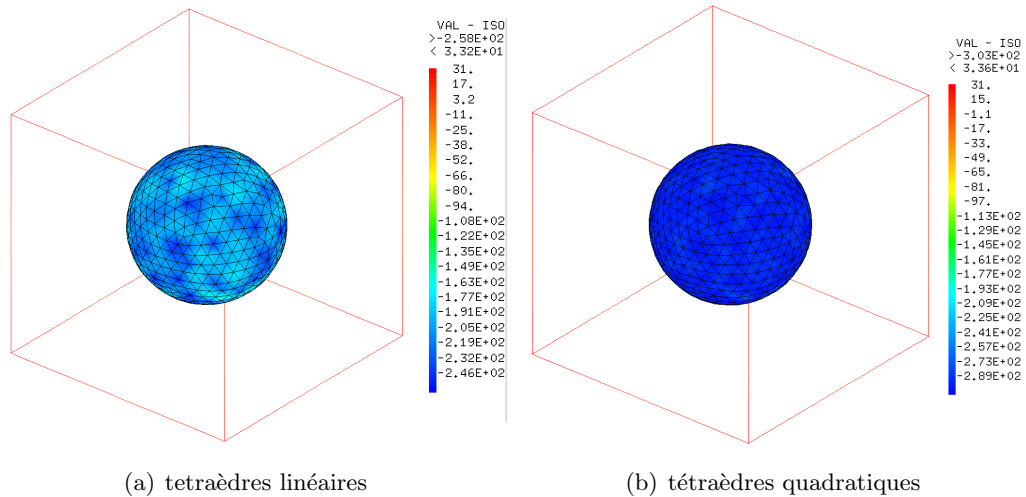


FIGURE 4.5 – Comparaisons de la contrainte principale max dans la matrice à la surface d’une bulle creuse, pressurisée à 300 MPa. Calculs éléments finis réalisés avec des éléments linéaires à gauche et quadratiques à droite.

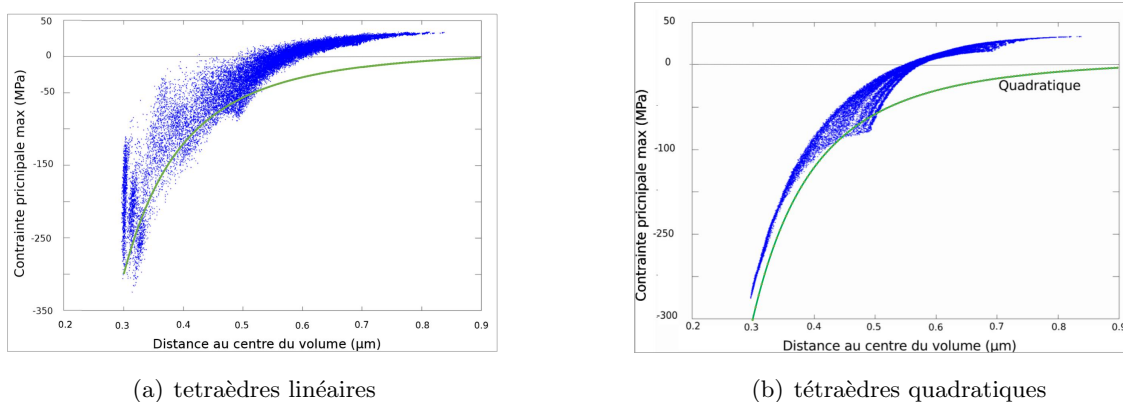


FIGURE 4.6 – Contrainte principale max dans la matrice à la surface de la bulle (pressurisée à 300 MPa) en fonction de la distance au centre de la bulle jusqu’aux bords du VER (cubique de l’arête $0,5 \mu\text{m}$). A gauche calcul réalisé à partir d’éléments linéaires et à droite à partir d’éléments quadratiques.

Conclusion

L’utilisation de tétraèdres quadratiques est plus appropriée que l’emploi de tétraèdres linéaires. Les tétraèdres linéaires sont non conformes à la solution analytique sur la sphère unitaire soumise à une pression interne. L’utilisation d’éléments quadratiques permet une meilleure représentation de la géométrie des bulles. Notons qu’il n’est pas possible d’avoir une solution exacte à la surface de la bulle à cause de la procédure de maillage. En effet pour former des éléments quadratiques, la procédure SALOME génère des tétraèdres linéaires auxquels sont ajoutés des nœuds milieux, avec des fonctions de forme quadratique. On ne peut donc pas bénéficier d’une description exacte quadratique de l’enveloppe de la sphère par le maillage éléments finis. De plus, les éléments quadratiques ne sont pas courbes. La meilleure description obtenue dans le cas quadratique est donc due à l’augmentation du nombre de points d’intégration qui permet des corrélations plus justes par la possibilité de représenter

des champs de contraintes affines par élément. C'est pourquoi les éléments quadratiques sont plus performants que les éléments du premier ordre dans les zones à forts gradients.

Par la suite nous n'utiliserons que des éléments tétraédriques quadratiques pour ce chapitre.

4.1.3.3 Méthode de convergence au maillage (illustrée sur le fuseau pastille polydisperse)

Une étude de convergence au maillage est réalisée sur le fuseau pastille polydisperse. Ce fuseau permet d'inclure l'influence de différentes tailles de bulles (0.8, 1 et 1.2 μm de diamètre) dans l'étude. Dans le script, le raffinement est déterminé par rapport au rayon de la plus petite bulle : ici $r = 0.4 \mu\text{m}$. La convergence au maillage est réalisée sur quatre tailles de mailles variant entre 0.267 μm ($r/1.5$) et 0.133 μm ($r/2.25$). Chaque maillage obtenu est illustré ci-dessous par la figure 4.7.

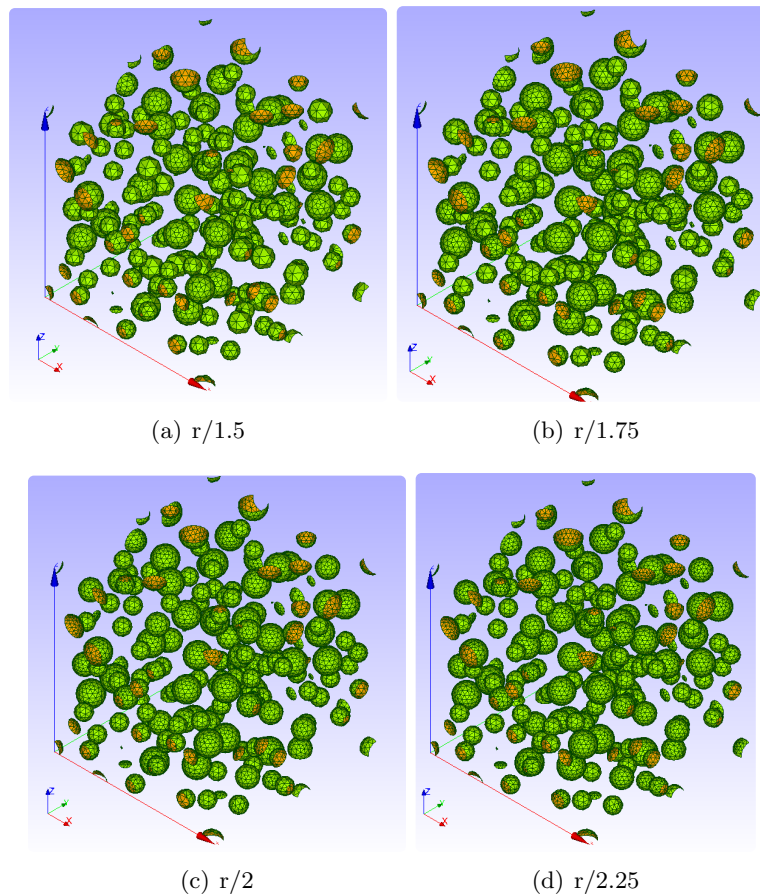


FIGURE 4.7 – Maillages des quatre raffinements testés pour le VER polydisperse simplifié 9 μm .

Nous comparons la réponse de ces quatre maillages à un chargement de pression de 200 MPa dans les bulles. Les mêmes hypothèses matériaux et les mêmes conditions aux limites sont reprises de la partie précédente (voir tableau 4.1).

Pour chaque raffinement, la fonction de répartition, exprimée en fraction volumique, de la contrainte principale max atteinte dans les quatre maillages est tracée sur le graphique 4.8 ci-dessous. Le détail des valeurs est synthétisé dans le tableau 4.3.

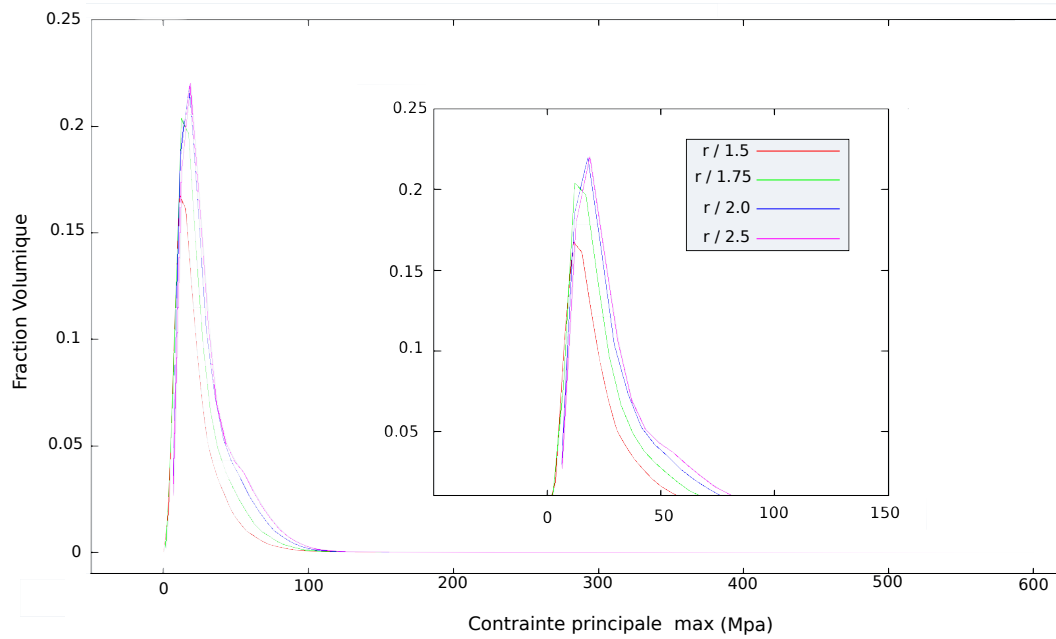


FIGURE 4.8 – Fonction de répartition de la contrainte exprimée en fraction volumique des éléments, sur le VER polydisperse pastille. Les résultats sont donnés pour quatre tailles de maille ($r = 0,4 \mu\text{m}$).

Raffinement	Éléments	Nœuds	Contrainte principale max $\sigma_{I \text{ Max}}$ (MPa)	Écart-type (MPa)	Moyenne (MPa)
r/ 1.5	102 592	164 453	380	28.4	26.8
r/ 1.75	139 159	221 193	537	28.5	23.7
r/ 2	206 615	323 278	687	30.5	24.7
r/ 2.25	239 562	445 356	666	24.8	31.6

TABLE 4.3 – Caractéristiques et résultats en contraintes sur les maillages du fuseau polydisperse pastille

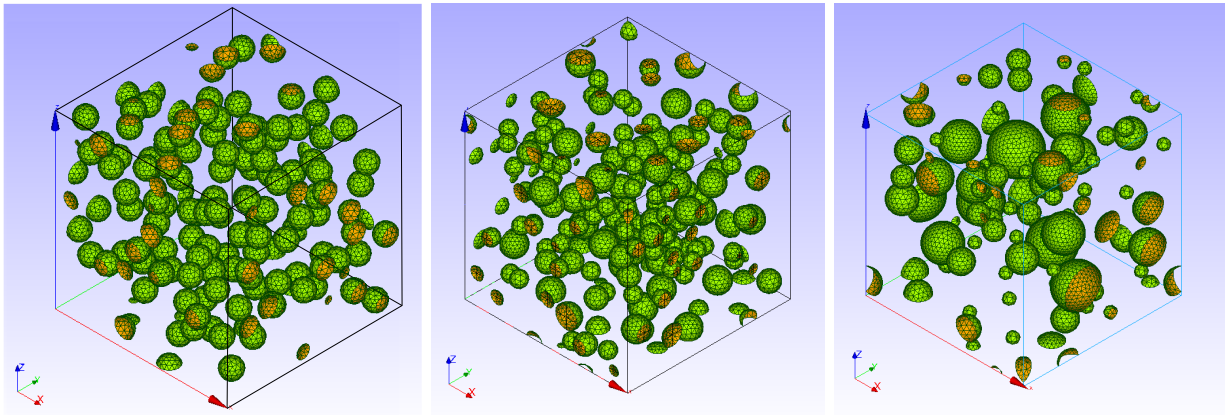
Les résultats obtenus sont relativement proches sur les deux maillages les plus raffinés (les raffinements $r/2.0$ et $r/2.25$). Sur la figure 4.8 ces deux raffinements correspondent à la courbe rose ($r/2$) et à la courbe bleue ($r/2.25$), qui sont presque confondues. Le maximum de contraintes atteint sur ces maillages sont respectivement de 687 MPa contre 666 MPa, représentant un écart de 3 %.

Le raffinement de la taille de maille permet d'atteindre une convergence des résultats pour ces cas. Compte tenu du gain sur le nombre de nœuds entre ces deux maillages (323 278 contre 445 356, soit 27 % de nœuds en moins sur le raffinement $r/2$ par rapport à $r/2.25$), le maillage $r/2$ est choisi comme référence pour ce fuseau. Il permet un gain de mémoire et de temps important pour un faible écart sur la solution.

La convergence au maillage a également été réalisée sur le maillage monodisperse. La démarche étant identique, les résultats ont été placés en annexe D). Ce fuseau ne contenant qu'une seule taille de bulle, le paramètre r vaut $0,5 \mu\text{m}$. Pour l'étude de convergence, cinq tailles de mailles ont été testées entre $0,19$ et $0,36 \mu\text{m}$. Le maillage $r/2.5$ apparaît comme convergé et est retenu comme raffinement de référence pour le VER monodisperse. Le rapport entre r/r_{tail} est égal à 0.2, comme dans le cas précédent sur le fuseau polydisperse pastille.

4.1.4 Bilan : choix du maillage convergé pour chaque fuseau HBS

L'étude de convergence au maillage a permis d'établir un VER pour chaque fuseau considéré représentatif de la zone HBS (monodisperse, pastille polydisperse et disque polydisperse). Ce travail a montré que la convergence au maillage dans notre cas était atteinte pour un rapport commun entre le rayon de la plus petite bulle du fuseau et le paramètre de maille $r/r_{tail} = 0,2$). Les VER résultats pour les trois fuseaux HBS sont présentés sur la figure 4.9. Les paramètres de chaque maillage sont récapitulés dans le tableau 4.4. Ces VER servent à présent de référence pour tous les calculs élastiques mais serviront aussi pour tous les calculs non linéaires à venir qui sont présentés dans le chapitre suivant.



(a) VER pastille monodisperse

(b) VER pastille polydisperse

(c) VER disque polydisperse

FIGURE 4.9 – Maillage de référence des VER pour les trois fuseaux de bulles HBS - $9\mu\text{m}$.

	Monodisperse	Pastille polydisperse	Disque polydisperse
Raffinement	$r/2.5$	$r/2$	$r/1.5$
$r/r_{tail} =$	0,2	0,2	0,2
Éléments	200 118	202 701	188 906
Noeuds	312 745	316 657	293 849
Taille de maille (μm)	[0.047 - 0.61]	[0.07 - 0.62]	[0.08 - 0.68]
Contrainte principale max $\sigma_{I \text{ Max}}$ (MPa)	459	554	469
Ecart-type (MPa)	23	24	28
Moyenne (MPa)	27	28	37

TABLE 4.4 – Caractéristiques des VERs utilisées pour les caculs élastiques pour les trois microstructures.

4.2 Résultats des calculs élastiques

4.2.1 Influence du tirage

La distribution aléatoire des bulles dans le volume fait varier la distance entre chaque bulle d'un tirage à l'autre et ce malgré un fuseau de taille et un taux de porosités identique. Pour rappel, seule la distance minimale entre les bulles a été fixée à 12 nm [BKTL03] dans ce travail. A travers l'étude

statistique de différents tirages, nous souhaitons évaluer l'impact de la distribution aléatoire sur la concentration de contrainte dans le volume. Une concentration de contrainte importante favorise la fissuration. Comme les bulles ne sont pas réparties selon un schéma régulier, la distance entre deux bulles diffère et la porosité locale peut être plus forte que la porosité moyenne dans le VER. Plus deux bulles seront proches, plus l'effet d'interaction sera marqué et augmentera les contraintes dans la matrice.

Pour cette étude, vingt tirages du fuseau pastille polydisperse, possédant le même taux de porosités, ont été testés avec un chargement similaire dans des bulles de 200 MPa. Les maillages obtenus pour ces vingt tirages ont été placés en annexe E où les différents arrangements de bulles sont visibles. Les conditions de calcul et de chargement restent inchangées et sont rappelées dans le tableau 4.1. La figure 4.10 présente la réponse de chaque tirage sous la forme d'une fonction de répartition de la contrainte principale maximale, exprimée en fraction volumique.

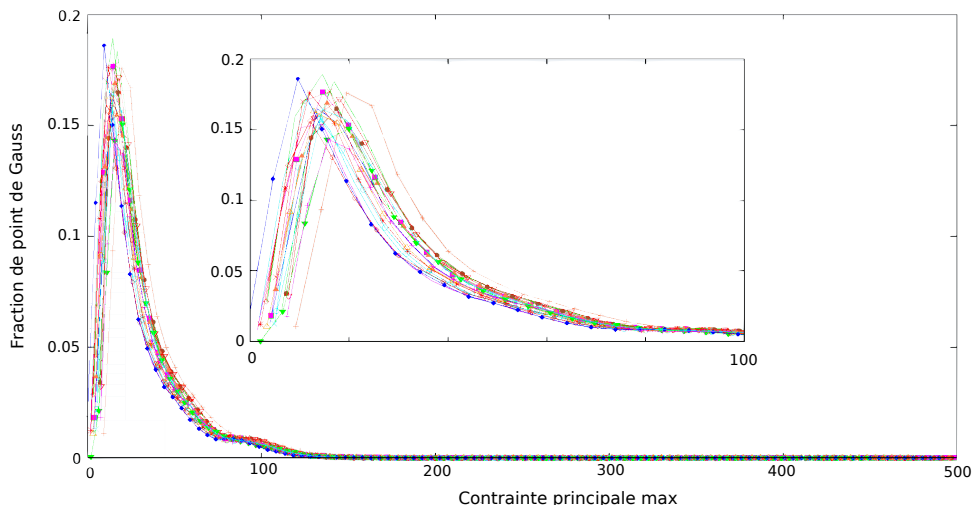


FIGURE 4.10 – Tracés du niveau de contraintes (en MPa) atteint dans les points de Gauss sur vingt tirages polydisperse pastille $9\mu\text{m}$, chargement 200 MPa

Le comportement sur l'ensemble des tirages est similaire :

- seul un faible nombre de point de Gauss dans la matrice est chargé. Les plus chargés sont en périphérie des bulles.
 - la valeur de contrainte la plus représentée est de 30 MPa pour environ 15 à 17 % des éléments.
- Pour une analyse plus fine, le tableau 4.5 résume les valeurs du maximum des contraintes principales et de la contrainte moyenne dans la matrice sur les vingt tirages du fuseau polydisperse pastille :
- le maximum de la contrainte principale max varie entre 421 et 554 MPa, soit un écart de 24% entre le tirage 7, le plus sollicitant et le tirage 19, le moins sollicitant sur une même microstructure.
 - Pour tous les tirages la contrainte moyenne est située dans la même gamme de valeur entre 23 et 31 MPa. Cette valeur montre que l'ensemble de la matrice est peu sollicitée quelque soit le tirage. Cette valeur n'est pas suffisante pour faire fissurer la matrice : il faut analyser localement les contraintes autour des bulles pour détecter les valeurs de contraintes suffisantes pour faire amorcer les fissures.

Numéro du Tirage	Nombre de nœuds	Contrainte principale max $\sigma_{I \text{ Max}}$ (MPa)	Contrainte moyenne (MPa)
1	323 278	532	31
2	309 533	479	29
3	312 079	476	26
4	316 406	439	26
5	313 753	518	35
6	314 772	541	28
7	316 657	554	27
8	321 530	493	27
9	319 060	525	29
10	310 292	421	28
11	313 759	441	29
12	316 108	512	31
13	303 520	472	28
14	310 165	516	29
15	311 809	522	31
16	311 231	449	31
17	314 873	446	27
18	306 880	489	23
19	315 366	426	31
20	315 757	489	30

TABLE 4.5 – Résultats des calculs élastiques sur vingt tirages du fuseau pastille polydisperse.

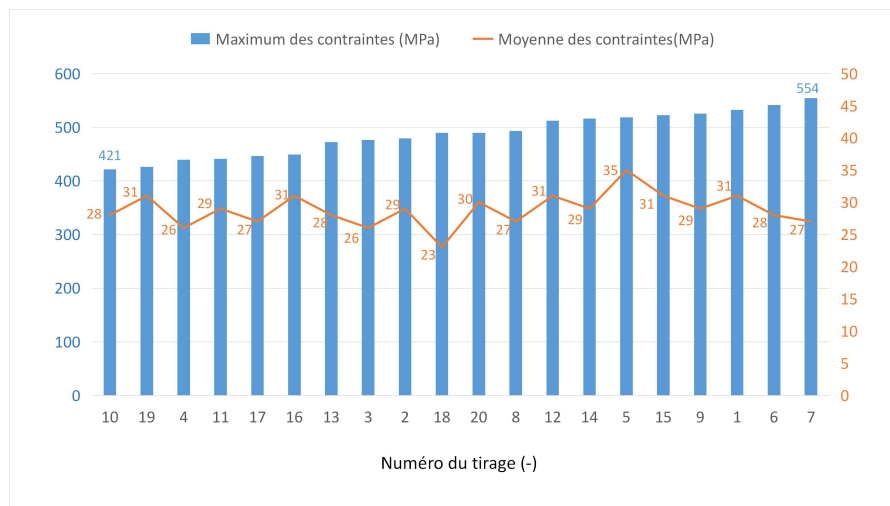


FIGURE 4.11 – Contrainte principale max (en bleu) ordonnée par ordre croissant selon le tirage et la contrainte moyenne (en orange) dans la matrice sur les vingt tirages d’un fuseau polydisperse pastille, pour 200 MPa de pression dans les bulles.

La figure 4.11 représente les deux valeurs de contraintes en ordonnant les tirages simulés par ordre croissant selon le maximum de la contrainte principale max. Le tirage le plus sollicitant en terme de maximum de contrainte principale max n’est pas forcément le tirage où la contrainte moyenne dans la matrice est la plus forte. Cependant, le paramètre de choix d’un tirage amorçant la fissure est la

valeur locale de la contrainte principale max. Ainsi, nous sélectionnons un tirage 7 parmi les tirages simulés, maximisant la fragmentation. Ce tirage est par ailleurs représentatif en terme de chargement moyen de la matrice. Ce tirage sera utilisé comme référence pour le fuseau pastille polydisperse pour les calculs non linéaires (au chapitre suivant). Les calculs s'effectuant sur plusieurs jours, nous ne pourrions étudier tous les tirages et faisons le choix de n'étudier le comportement à rupture que sur un seul tirage.

Remarque : afin de réaliser une étude statistique plus complète, il est possible de simuler un nombre plus important de tirages, par exemple réaliser l'étude sur 100 tirages. Ceci permettrait d'affiner les valeurs des bornes des contraintes identifiées sur ces vingt premiers tirages. Faute de temps, nous n'avons pas réalisé l'étude sur 80 tirages supplémentaires.

4.2.2 Nombre de sites d'amorçage

Nous appelons site d'amorçage un élément étant suffisamment chargé pour donner lieu à l'initiation d'une fissure, soit dans lequel la contrainte principale max est supérieure à la contrainte à rupture du matériau. Sur l'histogramme des fréquences cumulées décroissantes 4.12 nous relevons uniquement la contrainte des 1 % d'éléments les plus chargés de la matrice, les plus susceptibles de faire amorcer une fissure. L'étude est réalisée sur les vingt précédents tirages du fuseau polydisperse pastille. Les valeurs de contraintes pour chaque tirage sont données dans le tableau 4.6.

La contrainte seuil est comprise entre 107 MPa pour le tirage 4 et 122 MPa sur le tirage 5. La valeur de 109 MPa est relevée pour le tirage 7 de référence identifié précédemment. Le classement des tirages au sens de la contrainte maximale atteinte par 1 % du volume est différent de celui donné par la contrainte maximale au point de GAUSS. Ceci souligne que les deux classements ne font pas exactement la même analyse locale.

Nous souhaitons localiser la bulle autour de laquelle une fissure est la plus susceptible d'amorcer en comparant la contrainte moyenne en surface des bulles sur le tirage de référence numéro 7. La contrainte moyenne est calculée ici comme la moyenne de la contrainte principale dans la première couche d'éléments appuyés sur la surface des bulles. Les valeurs obtenues pour chaque bulle sont représentées dans la figure 4.13.

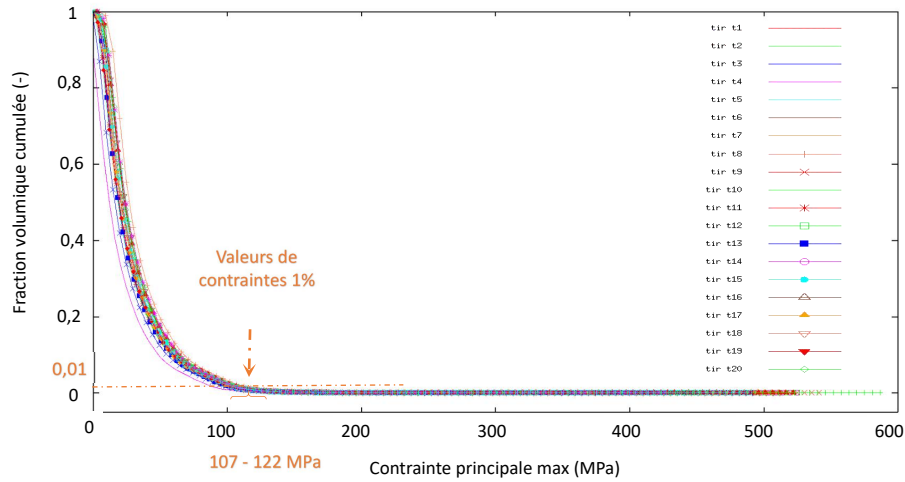


FIGURE 4.12 – Histogramme des fréquences cumulées décroissant de la valeur de contrainte principale max dans la matrice sur 20 tirages (fuseau polydisperse pastille).

Tirage	Nombres d'éléments du maillage	Contrainte principale max atteinte dans 1 % des éléments les plus contraints (MPa)
1	206 615	118
2	197 341	114
3	199 047	112
4	202 305	107
5	200 470	122
6	201 862	113
7	202 701	109
8	205 347	116
9	204 174	115
10	198 552	113
11	201 052	115
12	202 151	119
13	193 742	112
14	198 101	119
15	199 220	117
16	198 783	119
17	201 470	114
18	195 476	104
19	201 517	117
20	201 715	112

TABLE 4.6 – Contraintes dépassées par au moins 1 % des éléments dans chaque tirage ; correspondant aux éléments les plus sollicités donc les plus à même d'amorcer une fissure.

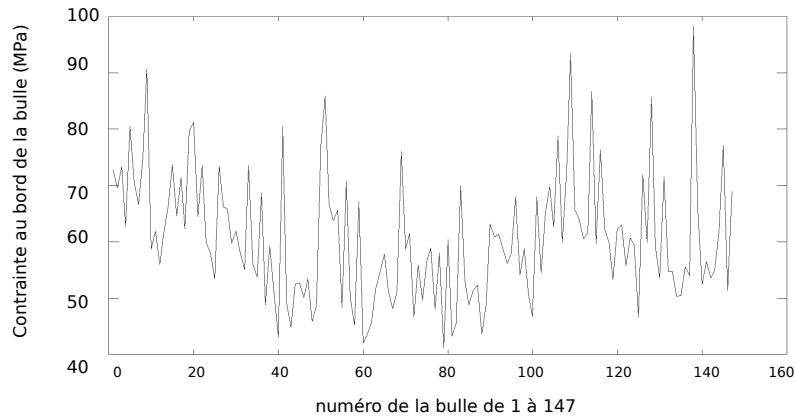


FIGURE 4.13 – Valeur moyenne des contraintes sur la couche supérieure d’éléments entourant les bulles dans le tirage 7, pour un chargement de pression de 200 MPa. La bulle où les contraintes sont le plus élevées est considérée comme le site d’amorçage le plus favorable.

Sur ce tirage, la contrainte moyenne par bulle est la plus forte pour les bulles 139, avec 98 MPa, 107 avec 93 MPa et 7 avec 90 MPa. Ces bulles sont respectivement identifiées sur la figure 4.14 en rouge, en orange et en vert. Il est à noter que les bulles sont éloignées les unes des autres et ne font pas parti d’un groupement. Les bulles sont de diamètres différents.

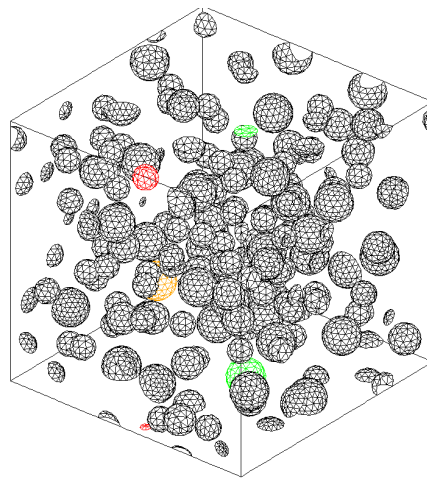


FIGURE 4.14 – Visualisation des sites préférentiels d’amorçage sur le tirage 7

Le nombre de sites d’amorçage est difficile à déterminer par ces calculs élastiques. En effet, l’interprétation élastique ne permet pas de définir si les bulles vont rompre en même temps ou les unes après les autres. Cette méconnaissance de la cinétique ne permet pas de donner avec certitude un ordre d’amorçage. Rien ne peut confirmer que la fissure s’initie de plusieurs sites au même instant. De plus, l’amorce de la première fissure entraîne la relaxation des contraintes et modifie l’état de chargement de la matrice, modifiant l’ordre des sites préférentiels de rupture initialement identifiés. Seule la bulle la plus chargée peut donner une indication sur l’amorce possible de la première fissure. Les calculs non linéaires apporteront une information supplémentaire sur la fissuration.

4.3 Bilan du chapitre

Ce chapitre a présenté les calculs éléments finis en champs complets préliminaires à la localisation, seconde étape de la méthode micromécanique. La mise en œuvre de calculs rapides, considérant la réponse d'une matrice élastique au chargement de pression des bulles HBS, a permis de :

1. Définir un maillage de référence (via une étude de convergence au maillage) pour chaque VER HBS (monodisperse pastille, polydisperse pastille et polydisperse disque). La discrétisation par éléments finis du volume respecte la périodicité requise pour l'application des CL sur les nœuds de l'enveloppe. La taille de maille déterminée ici est conservée lors des calculs non linéaires du chapitre suivant.
2. Valider que l'emploi d'éléments tétraédriques quadratiques est plus précis et donc préférable aux éléments linéaires pour nos raffinements.
3. Évaluer l'influence du tirage. La distribution aléatoire des bulles dans le volume faisant varier la distance entre elles, les concentrations de contraintes dans la matrice varient. Certains tirages favorisent donc l'amorçage de fissure. L'étude réalisée sur vingt tirages du fuseau pastille polydisperse montre qu'il existe une variation de 24 % sur le maximum de la contrainte principale.
4. Identifier le tirage le plus pénalisant qui facilitera l'amorçage de fissure pour les calculs non linéaires.

Les hypothèses et la méthode de calcul mise en place, le chapitre suivant présente la seconde partie de l'étape de localisation. Cette fois, nous étudions l'amorçage et l'extension de fissures suite au chargement de pression dans les bulles des différents VER HBS dans une matrice fragile.

Chapitre 5

Simulations éléments finis avec loi de comportement non linéaire à l'échelle locale

Ce chapitre présente les calculs en champs complets sur le VER de la zone HBS déterminé aux chapitres précédents. Ces calculs correspondent à la seconde étape de la méthode micromécanique. Leur objectif est double :

1. effectuer une première analyse des résultats expérimentaux via le calcul en champs complets.
2. établir dans un second temps les données d'entrée nécessaires à la troisième étape de la méthode micromécanique : c'est à dire déduire les modes de fissuration (champ scalaire dans le VER) qui alimenteront le modèle homogénéisé.

Dans une première partie nous décrivons le modèle local DDIF2, choisi pour la simulation de l'endommagement et de la fissuration du combustible. Nous exposerons comment fixer la valeur des paramètres d'endommagement en entrée du modèle, afin de simuler l'amorçage et l'extension de fissure. Une deuxième partie exposera les résultats de simulations sur les microstructures représentatives de la zone HBS. Nous discuterons dans une troisième partie des points durs de la méthode à prendre en considération. Enfin, nous proposons une méthodologie de validation de ces résultats lors d'une quatrième partie.

5.1 Modèle d'endommagement local « DDIF2 »

5.1.1 Descriptif de la loi

Aux températures de sollicitation d'un APRP, la pastille UO_2 est fragile. Nous choisissons d'utiliser une loi de comportement appelée DDFI2 [MSTC08], qui est implémentée au format Mfront [CE14]. Ce modèle volumique est basé sur une approche d'endommagement continu et utilise une loi adoucissante linéaire. Cette dernière est déduite d'une approche de type zone cohésive mais est utilisée comme une approche continue de l'endommagement où la déformation de fissuration dérive de la discontinuité du déplacement sur un volume de longueur caractéristique L . Le modèle est ainsi capable de décrire l'adoucissement depuis l'accroissement de fissure microscopique à la rupture macroscopique quand le matériau perd sa rigidité mécanique.

Les différents cas de chargements possibles sont visibles sur la figure 5.1. Elle représente la contrainte normale $\sigma : n_i$ en fonction de la déformation inélastique du matériau. Cette figure décrit comment après un chargement monotone croissant élastique, le matériau s'endommage après avoir dépassé la

contrainte seuil σ_M atteinte (phase 1) et peut aller jusqu'à rompre quand la déformation critique ε^{rt} est atteinte (phase 2). Ce modèle permet de prendre en compte des chargements complexes : il autorise notamment l'ouverture de fissures (phase 3) et leur fermeture (phase 6), avec une restauration des propriétés élastiques en compression lors de la fermeture de la fissure (phase 7). Si le déchargement est réalisé durant la phase d'endommagement (phase 5), le chemin de déchargement est supposé élastique avec une pente affine correspondant à une rigidité linéaire. Cela signifie que la plasticité locale, engendrée par les fissures microscopiques sont négligeables. Cette hypothèse semble raisonnable en considérant une rupture fragile. Après la fermeture complète de la fissure (phase 7), le matériau peut recouvrir la rigidité élastique lors d'un état de contrainte en compression, défini dans la base de fissuration. Ici la base de fissuration est dérivée du tenseur des contraintes principales à l'initiation de la première fissure. Dans sa formulation, il est supposé que la base des contraintes principale ne change pas au cours de la progression de l'adoucissement (relaxation de contrainte radiale) et que les contraintes de cisaillement sont négligées.

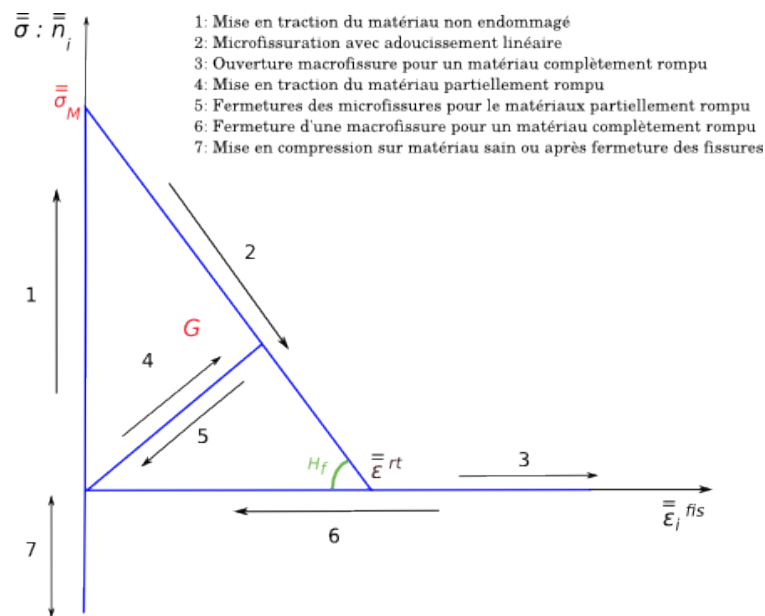


FIGURE 5.1 – Représentation des différentes phases de chargement du modèle DDIF2 représenté par une loi triangle linéaire avec seuil d'endommagement.

Tous ces chargements complexes sont principalement utilisés pour simuler le comportement du combustible en conditions normales et incidentelles, avec des cycles arrêt-marche du réacteur. Dans notre cas d'étude (conditions accidentelles de type APRP), nous utiliserons seulement les trois premières étapes : traction (phase 1), endommagement (phase 2), ouverture de fissure macroscopique (phase 3), dans la mesure où la phase de décharge n'est pas analysée.

Détermination de la base de fissuration

L'endommagement et la fissuration du matériau sont décrits par la fonction g du système d'équations (5.4) avec une fonction des contraintes linéaire par morceau. Les pentes des fonctions linéaires par morceau et leurs points de raccordement peuvent dépendre de l'historique de chargement (voir figure 5.1). Ce modèle est exprimé dans une base de fissuration n_i , qui donne en chaque point l'orientation locale du plan de la fissure. La première direction n_1 est identique à celle associée à la première contrainte principale qui dépasse la valeur seuil de σ_M . Pour l'amorçage d'une seconde fissure, on

analyse le champ de contrainte principale maximale du plan (n_2, n_3) . Lorsque la contrainte principale du plan (n_2, n_3) dépasse σ_M , le repère de fissuration est fixé définitivement. Ceci est la description générale du modèle. Néanmoins, en pratique, nous effectuons une simplification en n'autorisant qu'une seule direction de fissuration (celle donnée par le premier dépassement de la contrainte principale maximale). Lorsque $\varepsilon^{fis} \geq \varepsilon^{rt}$, la rigidité de l'élément est alors annulée avec toutes les composantes du tenseur des contraintes égales à zéro. Cette simplification est considérée comme valide sous deux conditions :

1. pas d'évolution de la base principale des contraintes lors de la phase d'endommagement.
2. aucune refermeture des fissures lors de la simulation (trajet de chargement composé uniquement des étapes 1, 2 et 3).

Dépendance au maillage et conservation de l'énergie dissipée constante par élément.

Dans une approche zone cohésive, les équations constitutives du modèle sont écrites en fonction du vecteur contrainte et du saut de déplacement. Pour l'approche de l'endommagement continu, les équations constitutives du matériau se basent sur la déformation et la contrainte, où le processus de la rupture peut être exprimé via la déformation inélastique [Hel15] ou comme une rigidité réduite [Lem85]. L'implémentation numérique d'un modèle zone cohésive peut être couplé avec une formulation éléments finis [Lor08] (ou éléments finis étendus X-FEM [MB02]). Dans ce cas, il existe dans l'approche d'endommagement continue une dépendance au maillage bien connue [Maz86] induite par la non conservation de l'énergie totale dissipée comme calculée par l'équation 5.1. Pour surpasser cette dépendance au maillage, deux stratégies sont possibles : la première consiste à introduire une longueur caractéristique L dans l'expression du module adoucissant H_f (voir loi de dépendance au maillage de l'équation 5.3 [Hel15]). Une autre technique, non employée ici aurait été de se baser sur une formulation non locale de l'endommagement [PCB87]. Ces deux stratégies ont le même objectif : garder l'énergie dissipée par unité de surface constante quelque soit le raffinement des éléments du maillage employé. Pour ces deux méthodes une taille maximum d'éléments finis existe : sa valeur est relative à la longueur caractéristique de l'équation (5.2). Si la taille des éléments finis est supérieure à L , la solution de la loi de comportement présente un "snapback" qui nécessite une décroissance de la déformation totale pendant la phase d'endommagement.

$$G_c \cdot S_R = \int_{V_R} \int_0^{\varepsilon^{rt}} \boldsymbol{\sigma} : d\boldsymbol{\varepsilon}^{fis} . dV \quad (5.1)$$

avec S_R , surface de la fissure, G_c l'énergie dissipée par unité de surface de la fissure, S_R , surface de la fissure, $\boldsymbol{\varepsilon}^{fis}$, le tenseur des déformations locales résultant du processus d'endommagement, ε^{rt} , la déformation à rupture, et V_R le volume de la zone endommagée. La longueur caractéristique est définie par :

$$L = \frac{V_R}{S_R} = \frac{G_c \cdot S_R}{\int_{V_R} \int_0^{\varepsilon^{rt}} \boldsymbol{\sigma} : d\boldsymbol{\varepsilon}^{fis} . dV} . \quad (5.2)$$

On en déduit le paramètre H_f le module d'adoucissement de la loi d'endommagement :

$$H_f = \frac{\sigma_M^2}{2 \cdot G_c} \cdot L, \quad (5.3)$$

où σ_M est la contrainte seuil de rupture.

Équations constitutives du modèle.

La formulation de ce modèle est donnée par le système 5.4 :

$$\left\{ \begin{array}{l} \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{E} : \boldsymbol{\varepsilon}^{el}, \\ \boldsymbol{\varepsilon}^{el} = \boldsymbol{\varepsilon}^{tot} - \boldsymbol{\varepsilon}^{fis}, \\ \boldsymbol{\varepsilon}^{fis} = \sum_i \boldsymbol{\varepsilon}_i^{fis} \cdot \mathbf{n}_i \otimes \mathbf{n}_i \\ g(\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{n}_i, \boldsymbol{\varepsilon}^{fis}) = 0 \end{array} \right. \quad (5.4)$$

qui s'appuie sur les variables suivantes :

- le tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$,
- le tenseur élastique \mathbf{E} ,
- le tenseur des déformations élastiques $\boldsymbol{\varepsilon}^{el}$,
- le tenseur de la déformation totale $\boldsymbol{\varepsilon}^{tot}$,
- le tenseur des déformations inélastiques $\boldsymbol{\varepsilon}^{fis}$,
- et les vecteurs de référence de la base de fissuration \mathbf{n}_i , où $i = 1$ à 3 , indiquant chacune des directions de la base.

Le modèle DDIF2 utilise deux paramètres d'entrées : une contrainte seuil de rupture σ_M et l'énergie dissipée G_c par unité de surface.

$$G_c = \frac{1}{2} \sigma_M \delta_c, \quad (5.5)$$

avec δ_c l'ouverture de fissure critique définie comme

$$\delta_c = \varepsilon^{rt} L. \quad (5.6)$$

La déformation critique ε^{rt} dépend de la taille de maille et est calculée à partir des équations 5.5 et 5.6 :

$$\varepsilon^{rt} = 2 \cdot \frac{G_c}{\sigma_M \cdot L}. \quad (5.7)$$

Le module d'adoucissement peut s'explicitier comme :

$$H_f = \frac{\sigma_M}{\varepsilon^{rt}}. \quad (5.8)$$

La fonction g est définie par morceau sur chaque phase de la figure 5.1, disponible dans le tableau de l'annexe F. Pour un chargement monotone, le matériau s'endommage avec un adoucissement linéaire, suivant l'étape 2, l'équation $g() = 0$ peut alors s'écrire :

$$\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{n}_i - (\sigma_M - H_f \boldsymbol{\varepsilon}_i^{fis}) = 0, \text{ avec } 0 < \boldsymbol{\varepsilon}_i^{fis} < \frac{\sigma_M}{H_f}. \quad (5.9)$$

En introduisant la loi de Hooke dans l'équation 5.9, la valeur de la déformation inélastique $\boldsymbol{\varepsilon}^{fis}$ peut être déduite de 5.10 :

$$[\mathbf{E} : (\boldsymbol{\varepsilon}^{tot} - \boldsymbol{\varepsilon}^{fis})] : \mathbf{n}_i - (\sigma_M - H_f \boldsymbol{\varepsilon}_i^{fis}) = 0, \quad (5.10)$$

Les résultats de calculs seront exprimés par rapport à l'ouverture de fissure critique δ_c .

Dans ce paragraphe, nous avons détaillé les équations constitutives du modèle DDIF2. Son formalisme prend en données d'entrées les propriétés élastiques et non linéaires du matériau. Les valeurs à considérer sur la zone HBS de l' UO_2 sont discutées dans le paragraphe suivant.

5.1.2 Choix des paramètres d'entrée de la loi de comportement

Les propriétés élastiques utilisées pour le modèle DDIF2 sont reprises suivant l'étude élastique du paragraphe précédent. Le modèle de nucléation de fissure macroscopique utilise une approche continue de l'endommagement qui nécessite deux paramètres : (σ_M, G_c) . La contrainte à rupture contrôle l'amorçage de l'étape d'adoucissement alors que la ténacité contrôle l'énergie dissipée par unité de surface pour créer une fissure macroscopique conformément au critère de Griffith. Comme le début de la phase d'endommagement est lié à l'extension de la fissure microscopique pour un matériau fragile, il est également possible de l'analyser via le critère de Griffith. La contrainte à rupture peut par conséquent être extraite de l'équation 5.11 dans laquelle a est la taille de la fissure microscopique et σ_M la contrainte de propagation de ces fissures au sens du critère de Griffith :

$$\sigma_M = \sqrt{\frac{E \cdot G_c}{\pi a}}. \quad (5.11)$$

D'après l'équation 5.11, les propriétés de rupture doivent prendre en compte la statistique de distribution des fissures microscopiques. L'article [BB99] propose une formulation de la de probabilité rupture du modèle de Weibull, fonction de la contrainte à rupture 5.12.

$$p_R = 1 - \exp\left(-\frac{V}{V_0} \cdot \left(\frac{\sigma}{\sigma_0}\right)^{m_0}\right) \quad (5.12)$$

Où p_R est la probabilité de rupture d'un volume V soumis à une contrainte σ avec (V_0, σ_0, m_0) sont les paramètres de Weibull.

Cette probabilité peut s'exprimer en fonction de la longueur de la fissure a :

$$p_R = 1 - \exp\left(-\frac{V}{V_0} \cdot \left(\frac{a}{a_0}\right)^{\frac{m_0}{2}}\right) \quad (5.13)$$

où a et a_0 sont les tailles respectives de fissure associées aux contraintes σ et σ_0 de l'équation 5.11

Nous pouvons conclure que la ténacité G_c est une propriété matériau, indépendante de l'échelle considérée, alors qu'au contraire, σ_M qui dépend de a , longueur des fissures microscopiques, est fonction de l'échelle de la modélisation. A la suite, nous détaillons comment déterminer les valeurs de ces deux paramètres.

Propriétés à rupture du combustible UO_2 dans la littérature

Des estimations des propriétés à rupture pour l' UO_2 vierge et irradié, initial ou restructuré, sont données dans la littérature. Nous relevons les gammes suivantes :

- la valeur de G_c est attribuée selon l'état d'irradiation du matériau. Pour un matériau sain, la ténacité estimée se situe entre 1 et 10 J/m².
- Plusieurs estimations simplifiées de σ_M ont été réalisées selon différentes échelles :
 - à l'échelle du réseau cristallin, l'évaluation de la contrainte à rupture est estimée à 6 GPa ;
 - à l'échelle microscopique et en considérant une taille de défaut de 5 μ m, la contrainte à rupture est alors estimée à 110 MPa.

Des valeurs plus précises sur ces deux paramètres à rupture ont été apportées notamment dans les travaux expérimentaux d' I.Aubrun et de J.-M.Gatt[GSAM15] portant sur l' UO_2 vierge et irradié. Plusieurs essais ont été réalisés :

1. Des essais de flexions sur des éprouvettes non entaillées. Ils permettent la mesure de σ_M pour des tailles de défauts caractéristiques des volumes des éprouvettes étudiées (mm). De plus une approche de type Weibull permet d'extrapoler ces valeurs pour les petites échelles : à l'échelle

macroscopique, la contrainte à rupture obtenue se situe entre 92 et 134 MPa, pour une moyenne de 114 MPa sur UO_2 . Un lien peut être réalisé ainsi avec la statistique des défauts présents dans le matériau.

2. Les essais de flexion trois points sur éprouvette entaillée, réalisés à des températures entre 20 et 1000°C. Ils permettent la mesure d'une contrainte à rupture de 46 MPa à température ambiante et de 109 MPa pour 792 °C. Ces résultats sont obtenus en considérant une approche de la mécanique de la rupture avec le facteur d'intensité de contraintes.
3. Les essais d'indentation. Ils permettent la mesure de la ténacité par une corrélation reliant G_C à la dureté et à la taille des fissures générées sous l'indenteur. Pour un barreaux d' UO_2 , la valeur de la ténacité est estimée à 10 J/m² à partir des essais d'indentation Vickers sur UO_2 vierge. L'évaluation de la contrainte à rupture est également réalisée à partir de la longueur de la fissure relevée lors de l'indentation. Sur l' UO_2 standard, la contrainte à rupture est estimée entre 22 et 99 MPa.

Une incertitude importante est à considérer lors de ces essais pour la contrainte à rupture et la ténacité.

D'autres évaluations de l'énergie de surface par indentation sont disponibles dans la littérature. Matze en 1979 [MIW80] utilise la dureté hertzienne. Cette méthode consiste à rechercher la charge limite, appliquée au moyen d'une bille, ne provoquant par conséquent pas de déformation plastique de la surface (ce qui permet d'obtenir seulement la dissipation liée à la fissuration). L'énergie de surface déduite est de l'ordre de 1,8 J/m².

Des analyses via la dynamique moléculaire ([HMD87],[HRA14],[BZZ⁺14]) donnent des valeurs d'énergie de surface de l'ordre de 0.5 à 1 J/m². Ici ces études de dynamique moléculaire dressent un bilan des énergies de surfaces avec ou sans surface libre (hypothèse : la différence entre les deux états correspond à l'énergie de cohésion de la matière).

Cette courte étude bibliographique montre que les valeurs obtenues sont très différentes selon les moyens de mesure. Malgré l'existence de ces résultats, leur faible nombre, les difficultés de mise en œuvre mais aussi les fortes incertitudes expérimentales ne permettent pas une détermination précise des paramètres pour le combustible irradié à fort taux. De plus, parmi ces résultats, seules les propriétés sur la zone HBS (combustible irradié à fort taux de combustion) sont à considérer pour notre modèle.

La disparité des résultats montre que les propriétés à rupture de l' UO_2 sont fortement dépendantes du taux de combustion et de la microstructure du combustible. L'identification des propriétés de la zone HBS nécessite des essais spécifiques et les résultats sur le centre de la pastille ne sont pas valables pour notre modèle (périphérie restructurée HBS). En effet, au cours de l'irradiation plusieurs phénomènes modifient le joint de grain et affectent ses propriétés :

- restructuration HBS et augmentation de la porosité intergranulaire.

La restructuration HBS subdivise le grain initial en grain submicronique. Le relâchement des gaz de fission aboutit à la précipitation de gaz sous bulles intergranulaires. Leur présence induit une réduction de la surface effective du joint de grain et par conséquent une diminution de sa tenue mécanique. Une estimation du taux de couverture des joints de grain par les bulles intergranulaires est nécessaire pour réaliser une évaluation de l'impact des bulles sur les propriétés à rupture. Grâce au module physico-chimique CARACAS, il est possible d'estimer un taux de couverture des joints de grain pour la zone centrale équivalente à 50 % pour les forts taux de combustion et donc d'évaluer une nouvelle valeur des propriétés. Cependant une réalisation similaire est complexe sur la zone périphérique de part la morphologie de sa microstructure et n'est pas calculée par CARACAS.

- la fragilisation chimique du joint de grains.

Il existe une fragilisation chimique des liaisons atomiques par la création de défauts ou par la précipitation de produits de fission aux joints de grains.

Ces effets, schématisés figure 5.2, conduisent à la réduction de G_c au cours de l'irradiation et lors de la restructuration. Les essais de micro dureté Vickers à température ambiante réalisés par Spino et al. [SCSR03] montrent les effets de l'irradiation et corrélient le taux de porosité à la ténacité de la pastille. Il considère des valeurs de 6 à 11 J/m² en périphérie de la pastille restructurée (pour un burnup moyen de 67,5 GWj/tM), et note une réduction de la longueur des fissures créées par l'indentation dans la zone RIM. Il faut noter que ces résultats caractérisent une propriété macroscopique moyenne du RIM et sont probablement délicats à utiliser vis à vis de la contribution de la dissipation d'énergie plastique lors de l'essai d'indentation.

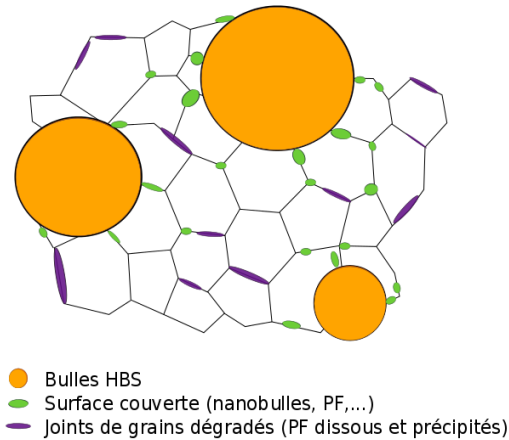


FIGURE 5.2 – Représentation schématique des gaz de fission précipités aux joints de grains ou présents sous formes de bulles intergranulaires après restructuration HBS du combustible.

Par conséquent, pour être capable d'estimer la valeur des paramètres de calcul pour la zone HBS, une évaluation de la couverture des joints de grain serait nécessaire. Actuellement une évaluation quantitative issue d'analyses MET est impossible. Il serait également nécessaire de connaître les propriétés mécaniques du joint de grain HBS. Un moyen de mesurer les propriétés à rupture à la bonne échelle pour notre analyse micromécanique est de réaliser des essais de nano indentation sur micro piliers (échantillons de 5 à 10 μm). Des essais sont en cours au CEA afin d'identifier les propriétés intra et intergranulaires du combustible irradié.

A ce stade, les résultats expérimentaux disponibles dans la littérature ne nous permettent pas conclure sur les valeurs de σ_M et G_c à utiliser. Dans notre modèle, nous avons également besoin de reproduire la rupture dans la zone HBS avec une analyse spécifique liée aux simplifications géométriques de la forme de la bulle. Le paragraphe suivant discute comment représenter les conditions d'amorçage de la fissuration de la zone HBS sous l'hypothèse de morphologie de bulles sphériques.

Détermination des propriétés à rupture pour le modèle bulle sphérique, reproduisant les conditions d'amorçage d'une bulle facettée dans la zone HBS par la méthode G_{θ}

Bien que les bulles aient été supposées de forme sphérique pour simplifier leur modélisation dans le VER, un zoom sur les bulles HBS révèle leur morphologie singulière. Les observations microscopiques à fort grossissement issues du programme HBRP [BKTL03] montrent des bulles HBS facettées (figure 5.3). Cette forme apparaît après la restructuration HBS, où l'enveloppe de la bulle est constituée de la frontière des dizaines de grains submicroniques qui l'entourent. La bulle prend alors une forme très

irrégulière comportant plusieurs singularités à angles aigües, dont un angle moyen est représenté par α . Ce défaut est le lieu de concentration de contraintes qui peut être assimilé à une préfissure dont l'extension est contrôlée par le critère de Griffith.

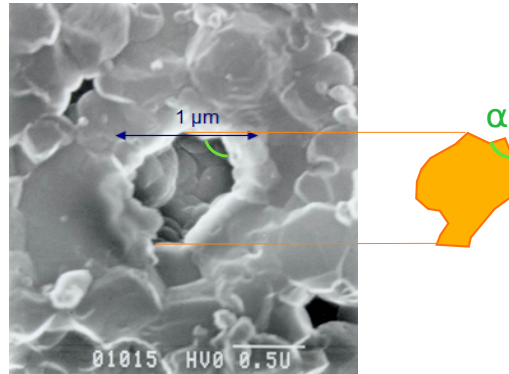


FIGURE 5.3 – Géométrie réelle, facettée d’une bulle HBS et représentation schématique en orange de la bulle HBS avec une singularité d’angle moyen α .

Actuellement, modéliser une géométrie de bulle si complexe est impossible dans le VER pour mener des calculs de fissuration. Pour connaître l’influence de la présence d’une singularité dans la bulles sur l’amorçage de la fissure, nous réalisons une étude 2D axisymétrique, utilisant la méthode G_{theta} dans Cast3m. Ce calcul a deux objectifs : i) calculer le taux de restitution de l’énergie au voisinage d’une bulle facettée suivant la méthodologie proposée par Chakraborty [CTP14] ; ii) déduire les conditions de propagation stable ou instable depuis la surface d’une bulle. Cette analyse nous permettra de choisir le couple de paramètre σ_M et G_c qui reproduit les conditions d’amorçage de la zone HBS sur une bulle parfaitement sphérique.

Nous comparons le taux de restitution de l’énergie sur deux morphologies de bulles :

- une bulle conique avec un angle représentatif des bulles HBS facettées ;
- une bulle sphérique.

Le schéma 5.4 montre la forme des bulles représentées et la figure 5.5, les maillages associés à ces deux géométries. Selon les hypothèses de symétrie, seul un quart de la bulle 2D peut être représenté. La méthode G_{theta} permet de calculer le taux de restitution de l’énergie G associé à une fissure initiale de longueur a . G est ensuite comparé à la ténacité du matériau pour définir l’amorçage de la fissuration suivant le critère de Griffith. L’hypothèse de la rupture fragile de l’UO₂ est conservée pour ces calculs.

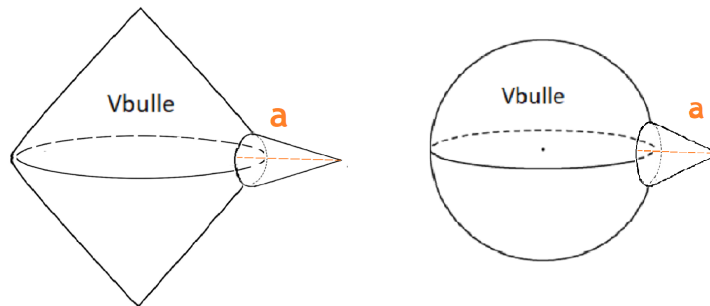


FIGURE 5.4 – Schéma de la forme des deux bulles étudiées pour le calcul G_{theta} : à gauche bulle facettée représentant la bulle HBS. A droite, la bulle sphérique du modèle numérique. Un défaut de longueur a est positionné pour favoriser l’amorçage de fissure.

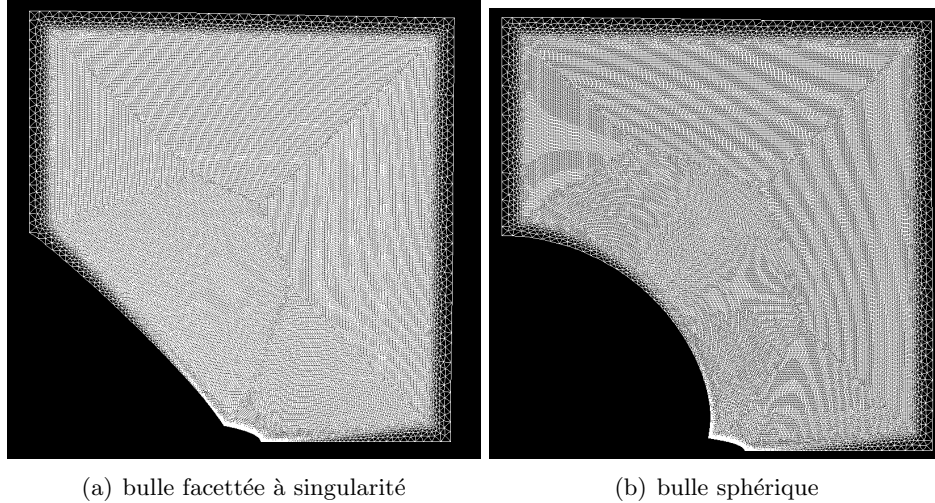


FIGURE 5.5 – Maillages des modèles de bulles considérées avec amorce.

Calcul du taux de restitution de l'énergie au voisinage d'une bulle avec G_{theta} - Détermination de σ_M pour notre modèle

En première étude, nous calculons le taux de restitution de l'énergie pour plusieurs longueurs de défaut a sur les deux formes de bulles, soit l'énergie à apporter pour amorcer une fissure au niveau de la singularité a lorsque la bulle est soumise à une pression interne. Dans ce calcul la pression est également exercée sur les lèvres de la fissure. Les résultats de l'évolution du taux de restitution en fonction du rapport a/l , où a représente la longueur du défaut et de l la taille de la bulle pour les deux géométries sont tracés sur la figure 5.6.

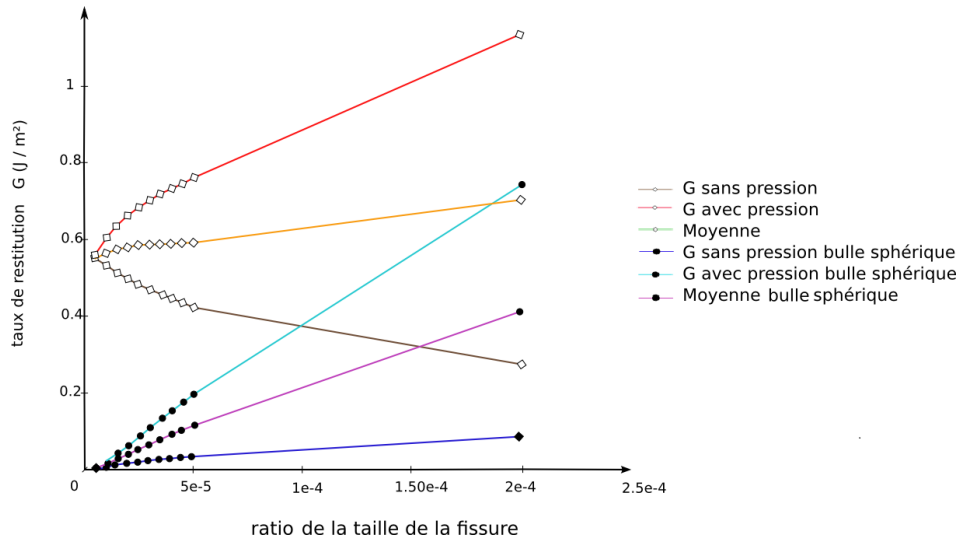


FIGURE 5.6 – Taux de restitution de l'énergie donné par la méthode G_{theta} pour un bulle sphérique ou facettée comportant une singularité, selon application de la pression sur les lèvres de la fissure ou non.

Alors que $G_{bulle\ sphérique}$ tend vers 0 si le défaut est de taille quasi nulle, le taux de restitution $G_{bulle\ facettée}$ associé à la bulle facettée prend une valeur non nulle dans la même situation. Ce résultat met en évidence que la géométrie d'une bulle facettée conduit à une singularité de contrainte, qui est

similaire à une préfissure et qui se traduit par 5.14 lorsque a tend vers 0 :

$$G_{bulle\ facette} = \lim_{a \rightarrow 0} G_{bulle\ facette+fissure}. \quad (5.14)$$

Pour obtenir une équivalence entre les deux morphologies, la fissure doit amorcer dans la bulle sphérique pour la même pression critique p_c que dans la bulle facettée. La fissure amorce lorsque $G(p_c) = G_C$ dans la bulle réelle. Pour la bulle sphérique le critère d'amorçage est donné par : $\sigma(p_c) = \sigma_M$. Si on considère une bulle dans un milieu infini on peut écrire que la contrainte tangentielle de traction est donnée par $\sigma(p_c) = \frac{p_c}{2}$. Connaissant la pression critique de la bulle réelle on peut alors écrire la contrainte à rupture à utiliser pour une bulle sphérique : $\sigma_M = \frac{p_c}{2}$. Cependant le paragraphe précédent montre que la mesure de la ténacité des joint de grains de la zone HBS n'est pas connue précisément, de ce fait cette contrainte à rupture équivalente pour la bulle sphérique peut être utilisée uniquement à titre qualitatif.

Analyse de la phase de propagation pour définir le paramètre H_f du modèle DDIF2. Le second objectif de cette analyse avec la méthode G_{theta} est de déterminer dans quelles conditions la fissure se propage de façon stable ou instable après l'amorçage. Nous comparons le taux de restitution de l'énergie obtenu en appliquant la pression sur les lèvres de la fissure. Les résultats sur les deux géométries de bulles sont comparés sur la figure 5.6. Sur les deux types de bulles, il existe un accroissement du taux de restitution de l'énergie avec l'allongement de la taille de la fissure : lorsque la fissure propage, l'énergie disponible dans le matériau augmente. Ce résultat correspondant à une propagation instable de la fissure, ce qui nous conduit à retenir cette hypothèse de fissuration instable pour définir le second paramètre H_f du modèle DDIF2 à utiliser avec la bulle sphérique dans notre modèle HBS.

Pour des raisons de convergence du calcul nous ne sommes pas capable de simuler l'effet de la pression sur les lèvres de la fissure initiée depuis une bulle 3D sphérique. Ce mécanisme physique présent dans la bulle HBS a néanmoins un effet moteur sur la propagation de fissure. Ne pas le prendre en compte dans les simulations sous estime l'état de fissuration dans le VER. Nous souhaitons quantifier l'influence du travail de la pression sur les lèvres de la fissure sur la prédiction du taux de restitution de l'énergie G afin de le prendre en compte dans l'évaluation de la ténacité à définir pour notre modèle. Pour pouvoir prendre en compte ce phénomène numériquement, nous faisons l'hypothèse de modifier la ténacité du matériau en lui soustrayant l'énergie par unité de surface liée à l'effet moteur de la pression. Cette énergie peut être estimée à partir de l'équation 5.15.

$$W_p = \int_0^{\delta} p \, d\delta, W_{p|min} = \int_0^{\delta_c} p \, d\delta_c. \quad (5.15)$$

Un minorant de cette énergie peut être obtenu avec l'ouverture critique de la fissure δ_c . Ne pouvant représenter la pression sur les lèvres de la fissure, son action sera modélisée de façon indirecte dans le travail de la pression en soustrayant son effet de la valeur de G_c . Cette valeur non physique de la ténacité est appelée ténacité effective G_{eff} :

$$G_{eff} = G_C \left(1 - \frac{p}{\sigma_M} \right) \quad (5.16)$$

Elle remplace en donnée d'entrée la ténacité du matériau pour permettre de représenter l'effet moteur de la pression sur les lèvres de la fissure.

G_{eff} appliqué à notre cas d'étude, est de l'ordre de 0.01 J/m² pour s'assurer d'un propagation instable après l'amorçage de la fissuration au bord d'une bulle sphérique.

5.1.3 Pilotage du chargement des bulles HBS en déformation.

Contrairement aux calculs élastiques réalisés au chapitre précédent, le chargement des bulles ne peut pas être appliqué directement sous la forme d'une condition limite de type pression imposée. En effet, la loi de comportement choisie autorise l'endommagement du matériau pouvant aller jusqu'à la fissuration : lorsque la rupture est complète, la rigidité dans l'élément devient nulle. La solution du problème est alors non déterminée pour un calcul sous conditions de Neumann à pression imposée. C'est pourquoi le chargement en pression imposée est remplacé par un pilotage en déformation, en supposant une expansion thermique fictive des bulles pour permettre la convergence du calcul après l'apparition de la première fissure. Cette méthode nécessite de définir un matériau fictif dans les bulles, de type élastique linéaire, dont les propriétés sont à déterminer (module d'Young E_{fictif} et coefficient de Poisson ν_{fictif}). Dans la loi de comportement, la relation liant contrainte et déformation peut s'écrire :

$$\boldsymbol{\sigma} = \mathbf{C}(\boldsymbol{\varepsilon}^{tot} - \boldsymbol{\varepsilon}^{thf}) \text{ dans } V, \quad (5.17)$$

où V est le volume du VER, ∂T , le contour des bulles la déformation thermique fictive représentée par $\boldsymbol{\varepsilon}^{thf} = \alpha \Delta T \cdot \mathbf{I}$, une déformation thermique.

Ce paragraphe explique dans un premier temps comment choisir les propriétés du matériau fictif des bulles puis dans un second temps la procédure de chargement à réaliser pour obtenir une même valeur de pression dans toutes les bulles du volume.

Détermination des propriétés élastiques du matériau fictif des bulles.

Nous cherchons à obtenir un état de contrainte purement hydrostatique dans la bulle, équivalent à un chargement en pression. La déformation thermique doit être appliquée à l'ensemble de la bulle, qui est maillée (contrairement au cas élastique, où la bulle était creuse et non maillée, sans gaz). Le champ de contraintes dans la bulle peut s'écrire sous la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}^s + \boldsymbol{\sigma}^d \text{ dans } V, \\ \boldsymbol{\sigma} = 2 \cdot \mu \boldsymbol{\varepsilon} + \lambda \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}) \cdot \mathbf{I} \text{ dans } V; \\ \text{si } \mu \ll \lambda \text{ alors } \boldsymbol{\sigma} = -p \mathbf{I} \text{ sur } \partial T, \end{array} \right. \quad (5.18)$$

où μ et λ , représentent respectivement le module de cisaillement et le module de compressibilité.

L'état de contrainte purement hydrostatique dans les bulles est obtenu en annulant la partie déviatorique des contraintes. Cette hypothèse revient à représenter les bulles comme un milieu, possédant un module de cisaillement μ nul. Il en résulte un vecteur de contrainte, normal à l'interface solide-gaz équivalent aux conditions limites du chargement en pression. Pour garantir cette situation, nous attribuons au matériau fictif un module de cisaillement très petit devant le module de compressibilité $\mu \ll \lambda$. A partir de ces hypothèses, il est possible de déterminer les propriétés élastiques du matériau fictif, de module d'Young, E_{fictif} et coefficient de Poisson, ν_{fictif} , à partir des expressions des coefficients de Lamé de la bulle, λ_{fictif} et μ_{fictif} .

$$\left\{ \begin{array}{l} \mu_{fictif} = \frac{E_{fictif}}{2(1 + \nu_{fictif})}, \\ \lambda_{fictif} = \frac{E_{fictif} \nu_{fictif}}{(1 + \nu_{fictif})(1 - 2\nu_{fictif})}. \end{array} \right. \quad (5.19)$$

En pratique, le rapport $\mu_{fictif} / \lambda_{fictif} = 1e^{-03}$, très petit et sous l'hypothèse $\lambda_{fictif} = \lambda_{UO_2}$, on peut calculer E_{fictif} et ν_{fictif} avec l'équation 5.19. Le choix d'un module de compressibilité comparable à celui de l' UO_2 est une hypothèse discutable ici. En effet elle ne correspond pas aux propriétés

réelles du gaz contenu dans les bulles. Dans notre cas nous avons conservé cette valeur pour éviter les problèmes de convergence du calcul puisqu'un module de compressibilité élevé favorise la relaxation des contraintes après l'amorçage et la propagation des fissures autour des bulles. Il serait nécessaire d'améliorer ce chargement thermique fictif afin de se rapprocher des propriétés du gaz (Xe/Kr majoritairement) en modifiant le module de compressibilité pour l'exprimer comme une fonction de la pression à partir de la loi des gaz parfaits. Cette hypothèse reste cependant plus complexe à mettre en œuvre car les propriétés du gaz deviennent fonction de la température simulée dans la bulle. Leurs valeurs doivent donc être réactualisées à chaque pas de temps. Ce travail d'amélioration nécessite par conséquent une attention particulière pour garantir la convergence des calculs.

Au final, nous en déduisons le couple de propriétés élastiques dans tableau 5.1 :

E_{fictif}	ν_{fictif}
200 MPa	0.4996

TABLE 5.1 – Propriétés élastiques du matériau fictif des bulles

Procédure de chargement pour obtenir une valeur de pression identique dans toutes les bulles.

La répartition aléatoire des bulles dans le volume conduit à une rigidité de la matrice autour du matériau fictif qui dépend de la distance des bulles voisines. De ce fait, appliquer un champ de déformation fictif uniforme conduit à obtenir un chargement de pression non homogène dans toutes les bulles. Ce paragraphe décrit la procédure de chargement pour déterminer les valeurs du champ de déformation thermique fictif à appliquer dans chaque bulle afin d'obtenir au cours du chargement une pression uniforme dans toutes les bulles.

1. Initialisation avec une déformation thermique unique ε_0 dans toutes les bulles.

La première étape consiste à définir l'influence du voisinage des bulles avec un calcul élastique. Chaque bulle i est chargée avec la même déformation thermique fictive qui prend une valeur arbitraire $\varepsilon_0 = \frac{1}{3} \frac{p_0}{\lambda_{fictif}}$. La déformation thermique fictive est appliquée au maillage des bulles. Pour chaque bulle i , la valeur du tenseur σ_i associé est déterminée par la loi de comportement :

$$\sigma_i = C(\varepsilon^{tot} - \varepsilon_i^{fic} \mathbf{I}), \quad (5.20)$$

avec $\varepsilon_i^{fic} = \varepsilon_0$. Dans le matériau fictif, nous avons fait l'hypothèse que $\mu_{fictif} \ll \lambda_{fictif}$ qui mène à un champ de contraintes purement hydrostatique où $\sigma_i = -p\mathbf{I}$. La pression résultante p_i^{ref} dans chaque bulle i peut se déduire de :

$$p_i^{ref} = \int_{V_{b_i}} \frac{\frac{1}{3} Tr \sigma_i}{V_{b_i}}, \quad (5.21)$$

où V_{b_i} représente le volume de la bulle i . La valeur de p_i^{ref} est alors différente pour chaque bulle.

2. Normalisation de la déformation fictive iso-pression.

La seconde étape consiste à uniformiser les valeurs de p_i^{ref} dans toutes les bulles. Un nouveau calcul élastique est réalisé où toutes les bulles sont chargées avec une déformation fictive propre, calculé pour la bulle i comme

$$\varepsilon_i^{fic} = \frac{\varepsilon_0}{p_i^{ref}}. \quad (5.22)$$

La normalisation par p_i^{ref} est faite sous l'hypothèse que la pression induite par les bulles j au voisinage de la bulle i (pour j différent de i) est négligeable par rapport à l'apport de la pression

de la bulle i elle-même. Pour nos calculs $\varepsilon_0 = \frac{\lambda_{fictif} \cdot p_0}{3}$ est calculée avec p_0 , pression cible dans les bulles égale à 200 MPa.

3. Déformation fictive appliquée dans le calcul.

Pour faire amorcer la fissure à une valeur de contrainte σ_M , nous normalisons le chargement fictif iso-pression ε_i^{fic} pour obtenir un indice de chargement unitaire correspondant à une contrainte principale max égale à σ_M . La valeur de la déformation fictive à rupture ε_i^{Max} qui fait amorcer chaque bulle est alors :

$$\varepsilon_i^{Max} = \frac{\varepsilon_0}{p_i^{ref}} \cdot \frac{\sigma_M}{\sigma_I}, \quad (5.23)$$

où σ_I est la contrainte principale max, obtenue à partir du calcul élastique à chargement iso-pression.

Dans nos calculs de fissuration, la valeur de ce paramètre de normalisation n'a pas de sens physique direct avec le chargement appliqué. Pour être certain de faire amorcer les fissures, nous prendrons un chargement maximal de $10 \varepsilon_i^{Max}$.

Notre incrément de chargement est égal à :

$$\delta \varepsilon_i^{Max} = \frac{10}{t_{max}} \varepsilon_i^{Max}, \quad (5.24)$$

avec $t_{max} = 100$ pas de chargement. En théorie, ce chargement permet de faire amorcer la fissure à incrément de chargement égal à $0,1 \varepsilon_i^{Max}$. En pratique l'instant d'amorçage de la fissuration sera au delà de 0.1 du fait de la redistribution des contraintes autour du premier point de Gauss où la contrainte à rupture σ_M est atteinte.

La valeur du chargement thermique est fixée une fois pour toute en début de calcul et ne tient pas compte de l'évolution de la rigidité au voisinage des bulles. Cette hypothèse mène à une pression non uniforme dans les bulles après l'apparition de la première fissure. En toute rigueur, le chargement thermique devrait faire l'objet d'une réévaluation à chaque pas de temps après la première fissure. Ce choix n'a pas été possible compte tenu des temps de calcul actuels.

Contrairement aux calculs élastiques, la limite de chargement n'est pas une valeur de pression mais un état de déformation fixé, non physique. Il faudra être attentif à l'incrément de chargement ainsi qu'à la déformation maximale pour interpréter les résultats et être représentatif de l'état de chargement des bulles lors des transitoires.

Comparaison des deux approches de pilotage

Afin de valider notre méthode de pilotage en déformation, nous la confrontons aux résultats d'un pilotage en pression sur bulles creuses par un calcul élastique réalisé dans un volume cubique homogène contenant une seule bulle sphérique en son centre. Des conditions aux limites de surface libre sont appliquées sur les faces du cube et le chargement en pression est de 100 MPa. La figure 5.7 montre les résultats de la contrainte principale maximale pour le chargement en pression à gauche ainsi que le pilotage en déformation au milieu. L'erreur entre les deux champs de contraintes résultats est calculée à droite. Le chargement thermique fictif mène au même état de contrainte dans la matrice que le chargement en pression à moins de 1% près. Nous en concluons que les deux chargements sont par conséquent équivalents.

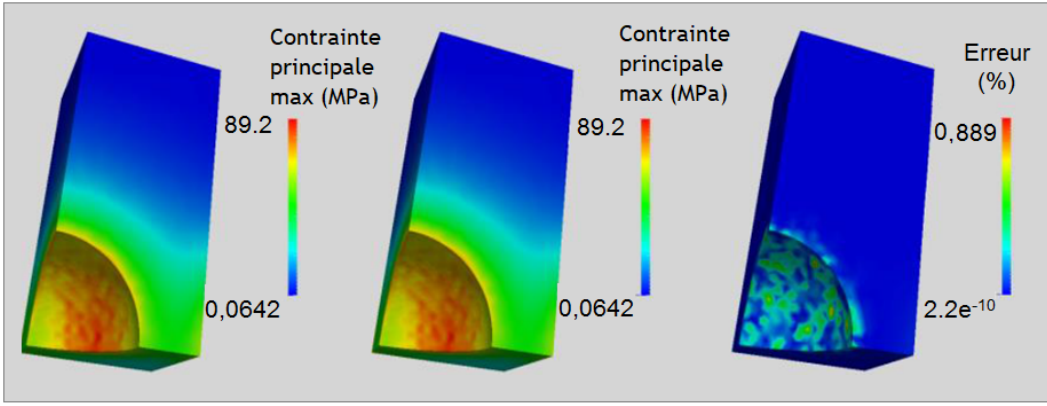


FIGURE 5.7 – Comparaison de la contrainte principale max dans la matrice pour un chargement de 100 MPa, obtenu selon deux méthodes de chargement. A gauche, calcul avec un pilotage en pression. Au centre, calcul avec un pilotage en déformation. A droite est représentée la différence entre les deux pilotages.

5.1.4 Résolution numérique : convergence forcée et adaptation du pas de temps

Cette partie n'a pas été développée dans le cadre de la thèse. L'algorithme utilisé a été spécifiquement créé pour assurer la convergence du calcul quasi statique en situation de propagation instable de fissure dans les matériaux fragiles. Pour plus de détails, le lecteur peut se référer à l'article de Michel and al. [MHRE16]. La résolution mécanique de nos simulations est associée à une convergence forcée. Cet algorithme, illustré 5.8, est implémenté dans le code éléments finis Cast3M comme une option de convergence.

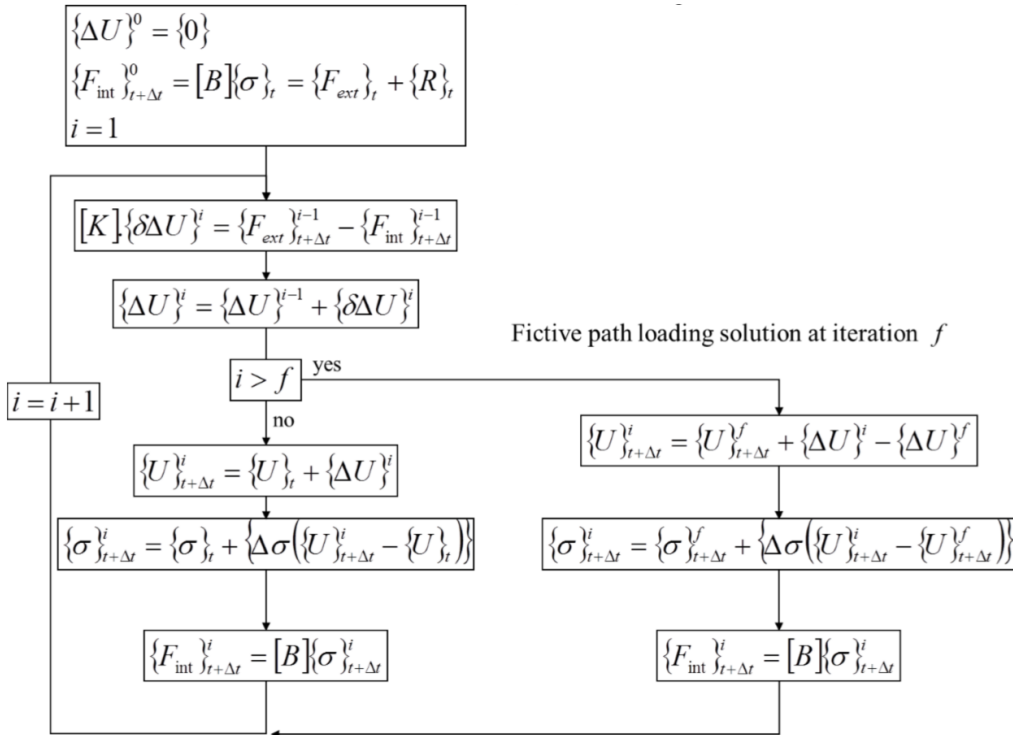


FIGURE 5.8 – Description de l'algorithme de la convergence forcée utilisé pour les calculs de fissuration [MHRE16].

Il s'agit d'accepter un état mécanique d'équilibre intermédiaire entre deux états d'équilibres, alors que seules les relations de comportement sont vérifiées (l'équilibre statique n'est pas forcément vérifié). Dans ce cas, le pas de temps du calcul standard i est divisé en pas de temps intermédiaires, appelé itération f dans la figure 5.8. En cas de convergence forcée l'état d'équilibre précédent (dérivant du début du pas de temps standard) est remplacé par une solution obtenue à la fin du pas de temps précédent. Ce processus est répétée jusqu'à ce qu'un nouvel équilibre statique soit satisfait à la fin du pas de temps du calcul standard. L'ajout de solutions intermédiaires n'est réalisé que toutes les 5 itérations f .

5.2 Résultats de calculs avec un comportement non linéaire

Pour ces simulations, nous utilisons le modèle DDIF2 avec les paramètres suivants :

- **le module Young** E_{UO_2} et **le coefficient de Poisson** ν_{UO_2} déterminés au chapitre 4.
- **la contrainte à rupture** σ_M dont l'ordre de grandeur a été discuté dans la partie 5.1.2 ;
- **la ténacité effective** G_{eff} . Ici la valeur fixée est non physique. Pour éviter le "snap back" dans la loi de comportement, le module adoucissant doit être égal à : $H_f = -\frac{1}{2} E = -1 e^{-5}$ MPa (voir description du modèle DDIF2 pour plus de précision partie 5.1.1). Compte tenu de nos tailles de maille, la valeur de G_{eff} est comprise entre 3.10^{-3} et 3.10^{-2} J/m². Ces valeurs très faibles permettent d'assurer une propagation de fissure instable.

Nous appliquons un **chargement thermique fictif** pour simuler la montée en pression des bulles (présenté au paragraphe 5.1.3). **Des conditions aux limites périodiques** sont appliquées aux bords du VER (comme présenté au chapitre 2). Le tableau 5.2 récapitule les paramètres d'entrée des calculs non linéaires :

Matériau bulles	Matériau matrice	Modèle de fissuration	Chargement	Conditions limites
$E_{bulle} = 200$ MPa $\nu_{bulle} = 0.4996$	$E_{UO_2} = 200$ GPa $\nu_{UO_2} = 0.3$	$\sigma_M = 100$ MPa $G_{eff} = 0.03$ J/m ²	chargement en déformations	périodiques déformations libres

TABLE 5.2 – Propriétés communes aux calculs non linéaires pour l'étude de fragmentation.

Le tableau 5.3 rappelle les paramètres des maillages de références des trois microstructures HBS, sélectionnées lors du chapitre 3.

VER	Type	Éléments	Nœuds	Taille de maille (μ m)	Porosité (%)
Pastille monodisperse	tétraèdres	245 190	44 620	[0.04 - 0.63]	9.01
Pastille polydisperse	tétraèdres	206 615	46 298	[0.02 - 0.64]	9.01
Disque polydisperse	tétraèdres	188 906	42 060	[0.08 - 0.68]	10.6

TABLE 5.3 – Propriétés des maillages (éléments linéaires) selon le fuseau de la microstructure HBS.

Les résultats seront abordés sous trois angles et comparés sur les trois microstructures HBS :

1. **la pression moyenne dans les bulles.** Ce paramètre est plus simple à interpréter que l'ensemble des courbes de pression dans chacune des bulles. Nous nous intéresserons à repérer l'instant de première rupture, soit la première fragmentation importante. L'apparition d'une fissure entraîne une perte de rigidité du matériau qui se traduit lors du posttraitement par une chute de pression dans les bulles.
2. **les modes de fissuration.** Le mode de fissuration est un champ scalaire d'endommagement. Prenant une valeur entre 0 et 1 dans la matrice, où 0 indique que le matériau est sain, 1 que

le matériau est rompu, que le matériau est endommagé entre 0 et 1. Un mode correspondant à l'instant de première rupture peut être identifié. Ce mode nous servira de paramètre d'entrée pour le modèle d'homogénéisation au chapitre suivant.

3. **la fragmentation.** Un posttraitement est proposé afin de visualiser l'état du combustible et la taille des fragments du VER.

5.2.1 Pression moyenne dans les bulles

Le chargement de pression est appliqué à l'identique dans les trois microstructures. Le posttraitement, figure 5.9, confronte dans les trois microstructures HBS, la pression moyenne dans les bulles selon l'incrément de déformation thermique fictive. La microstructure la plus faible correspond au fuseau disque polydisperse qui rompt à 94 MPa pour un incrément de 0.28. Le fuseau pastille polydisperse rompt quant à lui à 125 MPa à un incrément de 0.41 et le monodisperse à 130 MPa pour 0.43. Cette confrontation montre que selon le fuseau considéré pour la zone HBS, la première fissure n'apparaît pas au même niveau de pression dans les bulles. Il est à noter un facteur d'intensification de contrainte plus important dans le fuseau disque polydisperse, lié à un rapport plus important entre la plus grande et la plus petite taille de bulle du fuseau ainsi qu'une porosité plus élevée dans ce VER (10,6 % contre 9,01 % dans les deux autres).

Après l'apparition de la première fissure, les bulles non rompues continuent d'être chargées. L'amorçage de nouvelles fissures à partir de ces bulles qui se déforment est traduit par des dépressurisations successives. La fragmentation du combustible s'effectue en plusieurs fois, avec l'apparition de plusieurs fissures. Le nombre de fissures et leur instant d'apparition dépend du fuseau considéré et du tirage (soit de l'arrangement des bulles). Pour le fuseau polydisperse pastille, les dépressurisations importantes sont constatées aux incréments de 0.41, 0.45 et 0.51.

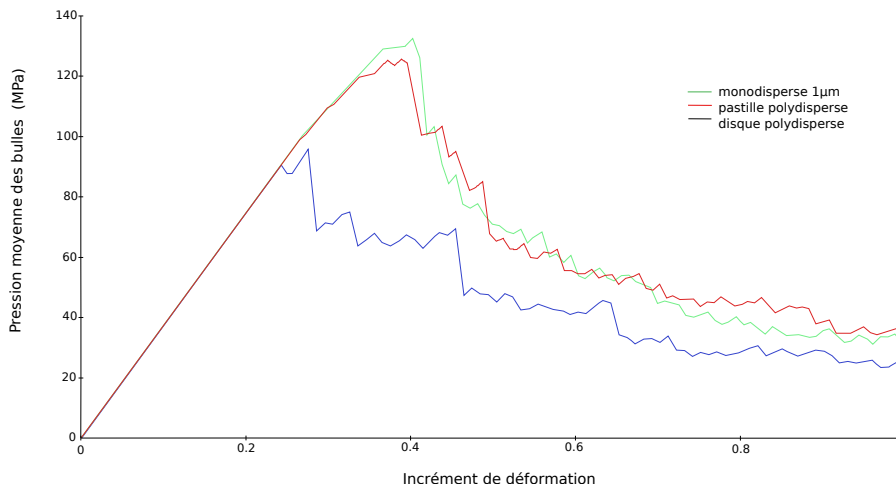


FIGURE 5.9 – Évolution de la pression moyenne dans les bulles selon l'incrément de déformation, pour les trois microstructures HBS choisies.

5.2.2 Modes de fissuration

Un mode de fissuration m est un champ scalaire avec une seule valeur par élément informant sur l'état du matériau à une itération donnée. Il est obtenu en normalisant la valeur maximale du tenseur de déformation de fissuration ε_{fis} par la valeur de la déformation critique ε^{rt} ($\varepsilon^{rt} = -\frac{\sigma_M}{H_f}$, avec

$H_f = \frac{1}{2}.E = -1.e^5 \text{ Mpa}$). Le résultat obtenu est un champ scalaire par élément. Les éléments dont le ratio $\frac{\epsilon_{fis}}{\epsilon_{rit}}$ est supérieur à 1, sont les éléments qui ont rompus. Ceux prenant la valeur 0 sont sains. Entre 0 et 1, ils sont endommagés. Ce mode permet de rendre compte de l'état de fissuration au déclenchement de la première extension de fissure instable.

Pour des raisons pratiques nous réduisons à la valeur 1 tous les éléments possédant une valeur supérieure à 1, soit pour tous les éléments ayant rompus. Il en résulte un champ normé entre 0 et 1. Ainsi le mode de fissuration pourra être utilisé directement en donnée d'entrée du modèle de rupture (voir chapitre 6). Les modes obtenus sur les différents VER sont disponibles figures 5.10, à l'instant de première rupture repéré au paragraphe précédent. Ce premier calcul montre que l'épaisseur des zones rompues est faible. Ce résultat est conforme aux hypothèses du modèle local et montre que l'algorithme utilisé permet de retrouver dans notre approche la rupture fragile.

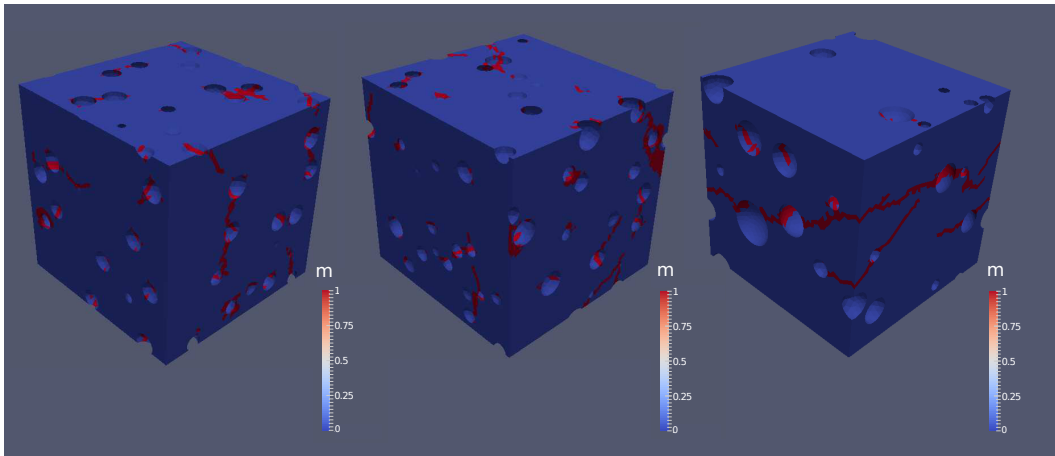


FIGURE 5.10 – Représentation des modes d'endommagement pour les trois VER : à gauche monodisperse pastille, au milieu polydisperse pastille, à droite polydisperse disque. Les modes sont identifiés à l'instant de la première fissure.

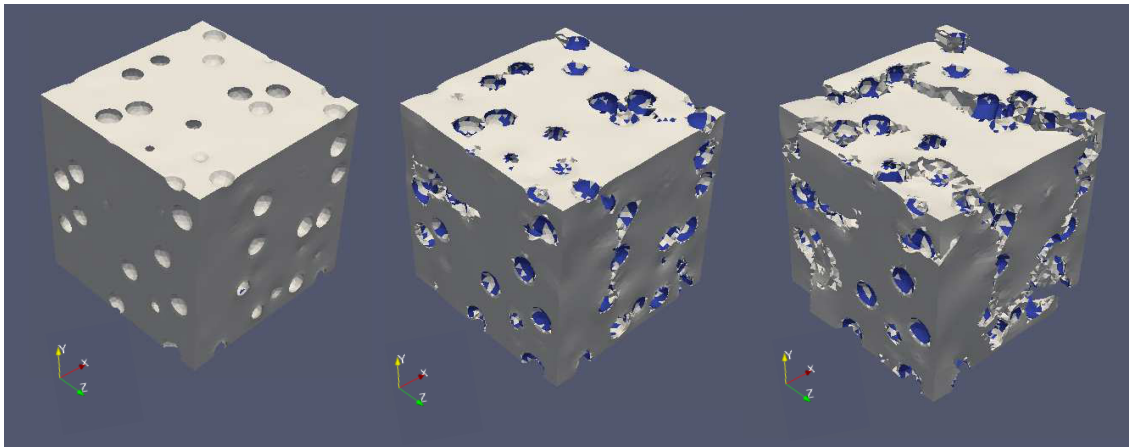
Ce mode nous permettra par la suite de réaliser l'homogénéisation au dernier instant du domaine élastique. Cependant, le mode identifié à l'instant de première rupture correspond à un état de chargement intermédiaire en cours d'essai. Pour pouvoir évaluer l'évolution de ce mode de fissuration pour des niveaux de chargements supérieurs, il faudrait étendre aux modes successifs mis en évidence sur les courbes de pression moyenne.

5.2.3 Étude de la fragmentation

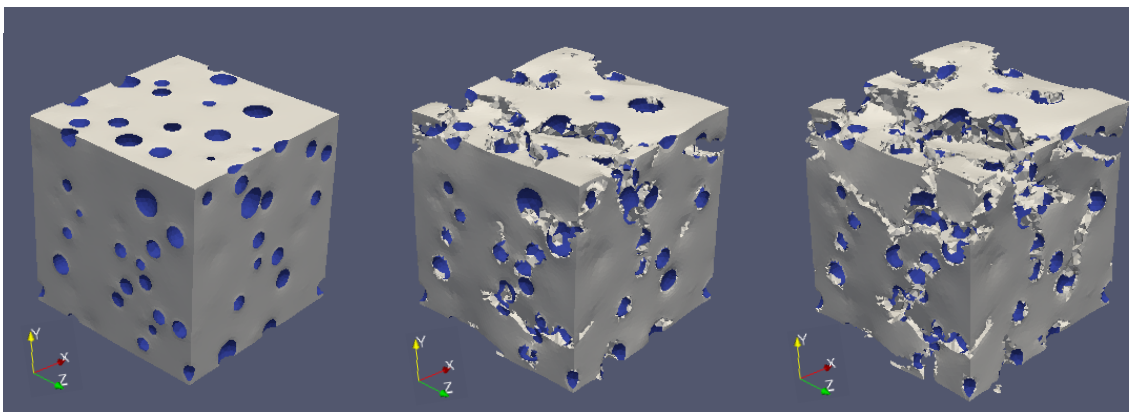
Formation de fragments

La figure 5.11 montre l'état de déformation dans les VER pour différents états d'avancement de la fissuration : à gauche, le VER dans son état initial sain, sans pression dans les bulles, au centre, l'instant correspondant au premier mode de fissuration de chaque VER (identifié précédemment) et à droite, un exemple de l'état de fissuration maximum obtenu dans les conditions de calcul (à ce stade, aucune nouvelle fissure n'apparaît si le chargement dans les bulles croît). Afin de faciliter la visualisation de la formation des fragments, un posttraitement qualitatif est appliqué en amplifiant la déformation par un coefficient de 500. La matrice est représentée en gris et les bulles en bleu foncé.

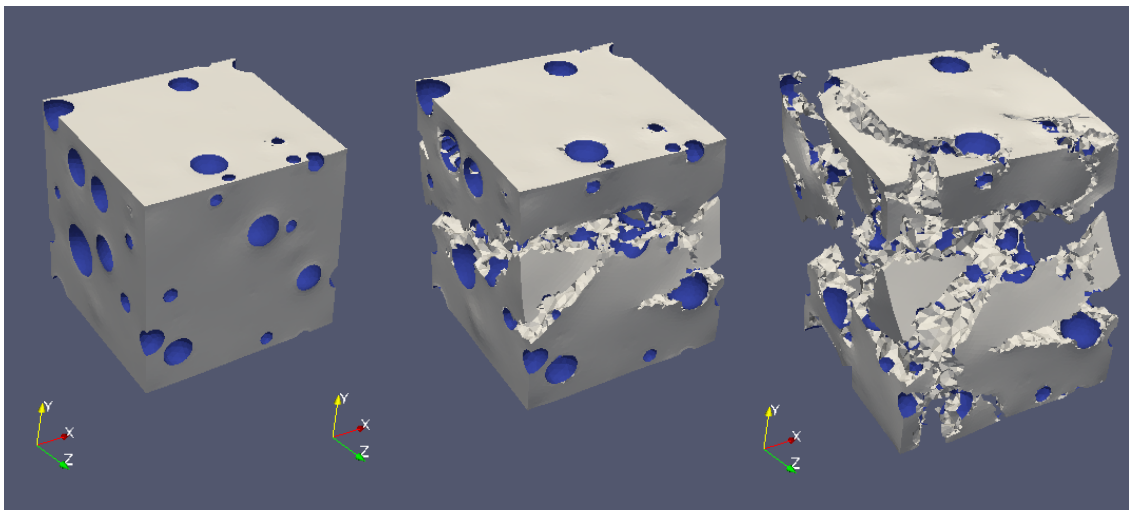
A l'instant du premier mode de rupture, les résultats montrent que seul le fuseau disque polydisperse est traversé par une fissure : la matrice est séparée en deux parties par des éléments rompus. Dans les autres fuseaux des fissures sont créées mais semblent avoir plus de ramifications dans le VER, en dissociant moins clairement les fragments. En continuant de charger les bulles, il est possible de



(a) VER monodisperse pastille $9\mu\text{m}$



(b) VER polydisperse pastille $9\mu\text{m}$



(c) polydispersee disque $9\mu\text{m}$

FIGURE 5.11 – Formation des fragments suivant les modes de fissuration pour les trois microstructures : à gauche, VER sain, au centre, premier mode de fissuration identifié, à droite, fragmentation maximale obtenue dans le cas de notre simulation.

faire rompre tous les VER en formant plusieurs fissures.

Afin d'avoir une vision plus quantitative, les résultats de fissuration sont présentés dans le tableau 5.4. Il contient la valeur de la pression moyenne à rupture dans les bulles, le nombre d'éléments rompus et leur proportion par rapport au nombre d'éléments total, ainsi que la surface de fissure créée (estimée avec le volume des éléments rompus divisé par la taille moyenne des éléments) pour l'instant précédent la première fissuration (soit le premier mode de rupture identifié). Dans chacun des cas, la pression à rupture est la pression moyenne atteinte dans les bulles à l'instant précédent la première dépressurisation. Les éléments rompus correspondent aux éléments ayant un mode de rupture égal à 1.

Microstructure	Pression à rupture (MPa)	Éléments rompus	Proportion d'éléments rompus (%)	Surface ouverte (mm ²)
Monodisperse	130.8	11064	4.5	5.51e ⁻⁴
Pastille polydisperse	125.3	8946	4.3	4.04e ⁻⁴
Disque polydisperse	94	11291	6.0	4.21e ⁻⁴

TABLE 5.4 – Résultats de fissuration sur les trois VERs .

Les résultats du tableau 5.4 ne permettent pas vraiment de mettre en évidence une différence de fragmentation entre les trois microstructures. En effet les volumes d'éléments rompus ou les surfaces estimées de fissures sont assez comparables malgré les écarts sur la pression de déclenchement du premier mode de fissuration.

Comptage numérique des fragments

Numériquement, nous essayons d'identifier la taille et la fraction volumique des fragments formés. L'idée est de regrouper les éléments d'un même fragment à partir du maillage de la matrice, duquel est soustrait les éléments rompus (où $m=1$). La procédure imaginée pour identifier les fragments est la suivante :

1. Un élément, appelé $el_{origine1}$ est sélectionné au hasard parmi les éléments non rompus de la matrice. Ce maillage est identifié comme le maillage de la matrice sans les éléments rompus. Les éléments rompus ne seront pas attribués à un fragment. L'élément $el_{origine1}$ appartient au premier fragment en cours d'identification.
2. Par la suite, nous identifions les éléments non rompus de la couche d'éléments appuyés sur $el_{origine1}$ et les associons au maillage du fragment en cours d'identification. En recommençant l'opération, nous faisons croître de manière itérative le maillage du fragment avec les éléments voisins non rompus. Le fragment défini grandit d'une couche d'élément par itération. La croissance du fragment continue jusqu'à ce que la surface de contact entre le fragment et les la couche d'éléments ajoutée à l'itération i soit inférieure à un critère de 5% de la surface du fragment (ce seuil est défini de façon arbitraire pour notre étude. Il permet de définir une surface de contact faible entre les fragments). Cette méthode permet d'identifier comme un fragment un ensemble d'éléments voisins entourés par des éléments rompus. Une fois la croissance terminée, le maillage résultant est identifié comme un premier fragment.
3. pour identifier un nouveau fragment i , l'opération est recommencée à partir d'un nouvel élément $el_{originei}$ appartenant au fragment i du maillage de départ. Cette fois ce maillage de départ est constitué du maillage de la matrice sans les éléments rompus et également sans le maillage des fragments déjà identifiés. De la même façon, un élément $el_{originei}$ est sélectionné aléatoirement,

puis le fragment grandit en choisissant dans la couche d'éléments appuyés sur $el_{origine}$ les éléments non rompus. La sélection du fragment est arrêtée par la même condition de surface de contact de 5 %.

4. La procédure est répétée jusqu'à ce que tous les éléments non rompus soient attribués à un fragment. Dans cette méthode, des fragments contenant un minimum arbitraire de 5 éléments peuvent être identifiés.

Les résultats de l'application de cette méthode sur le fuseau disque polydisperse sont disponibles figure 5.12. Ici deux fragments sont identifiés représentant respectivement 42 et 58% du volume des éléments non rompus. Cette méthode de comptage des fractions volumiques des fragments est donnée par une estimation simplifiée des fragments, basée sur la surface fissurée. Celle-ci est comparée à un découpage cubique régulier du VER. Cette méthode ne comprend pas la prise en compte du volume des éléments rompus, induisant un biais dans l'estimation de la fraction volumique des fragments.

Ces résultats sont difficiles à interpréter directement en terme de nombre de fragments. En effet, compte tenu des conditions aux limites périodiques sur le VER, les fragments en périphérie doivent être identifiés comme plusieurs parties complémentaires d'un même fragment construit par périodicité. De la même façon que les bulles intersectées par un bord, une arête ou un coin du VER sont construites, le décompte des fragments doit prendre cette périodicité en compte. Cette fonction n'a pas été implémentée dans la méthode.

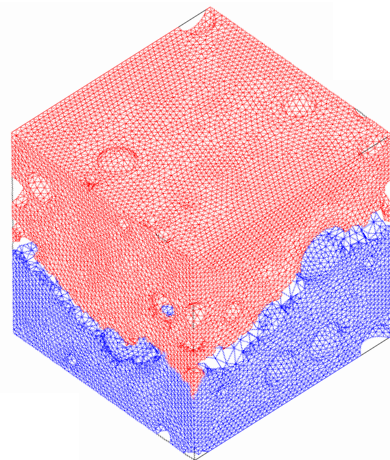


FIGURE 5.12 – Identification des fragments sur le fuseau polydisperse disque pour le premier mode de fissuration identifiés.

Plusieurs difficultés sont soulevées par cette procédure :

- L'attribution des éléments endommagés et retirés du maillage. Dans notre étude, les éléments rompus ne sont pas comptabilisés lors de l'étape d'identification du fragment. Or ces éléments (représentant de la matière) ne peuvent être retirés simplement dans le calcul de la fraction volumique et des dimensions des fragments. Pour les prendre en compte, il serait par exemple possible d'ajouter à chaque fragment une fraction d'éléments rompus proportionnelle à la surface du fragment. De cette façon, chaque fragment identifié serait corrigé proportionnellement à ses dimensions sans omettre d'éléments ;
- Détermination des fissures sous SALOME. Lors de la fragmentation, il existe un artefact de calcul dans SALOME : certains éléments rompus continuent de partager un nœud en commun. Ces éléments rompus ne sont donc pas séparés du reste de la matrice. Ce cas de figure se retrouve pour les éléments fortement déformés dans le maillage. Le nœud partagé est un problème pour identifier le maillage de départ de la méthode de comptage : la croissance du fragment ne trouve plus

de condition d'arrêt en surface. Pour s'assurer de la séparation de tous les éléments endommagés et obtenir des fragments, la solution apportée a été d'éliminer les éléments étant anormalement déformés au dessus d'un seuil de déformation défini arbitrairement, qui permet de supprimer tous les éléments concernés ;

- Conditions d'arrêt arbitraires. Plusieurs seuils définis ici sont arbitraires (surface limite de contact pour définir un nouveau fragment, attribution des éléments fissurés aux fragments, supprimer l'artefact de contact en définissant la déformation limite des éléments...). Ces valeurs peuvent être affinées pour permettre un meilleur comptage des fragments.

Aujourd'hui la présence de points durs dans l'identification et le comptage des fragments numériques ne permet pas des résultats satisfaisants sur l'estimation de la fraction volumique des fragments. La méthode d'identification nécessite par ailleurs d'être validée à partir des essais expérimentaux (par exemple à partir d'essais de transitoires thermiques sur des disques restructurés HBS). Ces résultats sont disponibles pour des échantillons de dimensions plus importantes que notre VER de $9\mu\text{m}$ ce qui rend la comparaison de la fraction volumique des fragments impossible avec les résultats d'essais. La dimension des volumes simulés doivent être augmentée pour permettre la validation ou il faudrait disposer de résultats d'analyse de fragments avec des tailles de tamis plus fines.

5.3 Discussions de la méthode établies et limites des calculs non linéaires

Cette partie vise à chercher les paramètres influençant la contrainte à rupture et les résultats en fissuration.

5.3.1 Chargement thermique

L'évolution de la pression moyenne dans les bulles peut être décrite selon trois phases (voir figure 5.13) :

1. une partie linéaire. Le chargement est identique dans toutes les bulles et évolue de la même façon. Il n'y a pas de fissuration.
2. Une deuxième phase est marquée par la présence d'une inflexion de la pression moyenne dans les bulles. Ce phénomène peut être expliqué par la création d'un endommagement dans le matériau au voisinage des bulles les plus sollicitées. Du fait d'un pilotage en déformation, la pression des bulles dans la zone endommagée diminue à cause de l'hypothèse de comportement adoucissant, qui entraîne une baisse de la raideur. Cette diminution est interprétée comme une chute de pression dans la bulle lors du posttraitement et donc comme une nouvelle amorce de fissure. La valeur de pression posttraitée est une valeur moyenne dans toutes les bulles : cette inflexion peut marquer le début de fissuration mais la majorité des bulles continue de voir une pression croissante.
3. Une chute soudaine de la pression est observée dans les bulles traversées par la fissure lors de l'extension instable. Cette chute de pression, liée à la relaxation des contraintes dans le matériau fictif des bulles, représente de façon très simplifiée le mécanisme de dépressurisation du fait des hypothèses de modélisation utilisée (module de compressibilité fictif du gaz sans représentation de l'écoulement du gaz vers les volumes libres).

Finalement, une fois la première fissuration instable déclenchée, les différences de pressions dans les bulles non rompues ne permettent plus de faire le lien avec le pilotage en température dans l'essai. Pour conserver ce lien il faudrait corriger le chargement thermique fictif pour obtenir une pression

cohérente avec la température homogène de l'essai. Un tel algorithme n'a pas pu être mis en œuvre dans le cadre de la thèse.

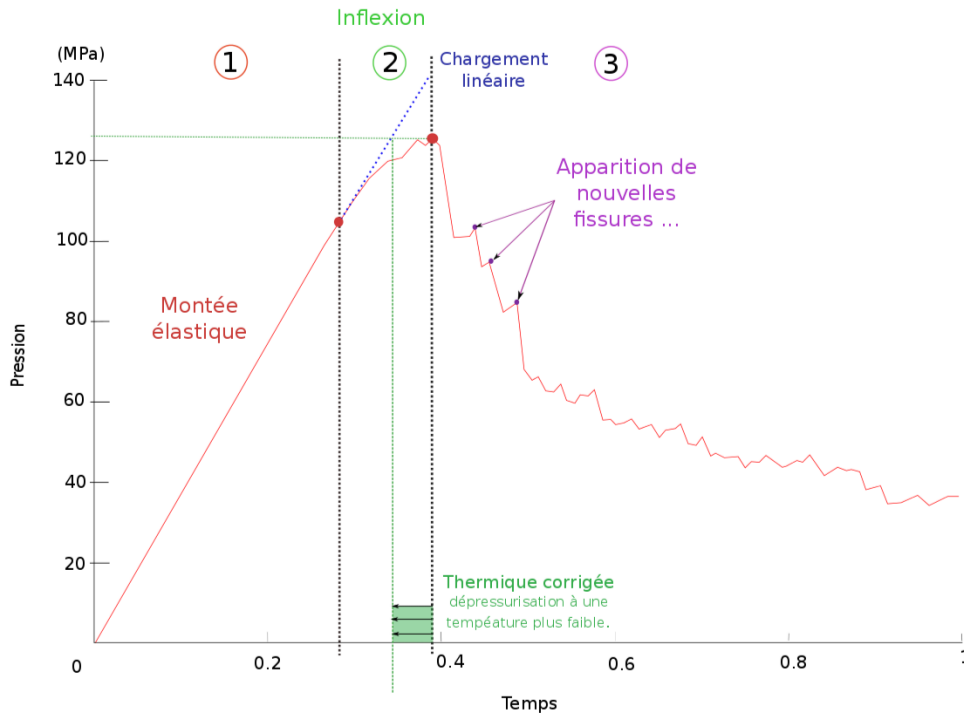


FIGURE 5.13 – Détail de la correction de la pression moyenne dans les bulles sur le fuselage pastille polydispense

Pendant la phase 2 on peut envisager de corriger l'instant de chargement pour retrouver la cohérence entre la pression des bulles et la température de l'essai en suivant la relation linéaire initiale avec l'initiation de l'endommagement (phase 1).

5.3.2 Influence du tirage sur la fragmentation

Comme pour les calculs élastiques, nous souhaitons évaluer l'influence du tirage sur la pression critique conduisant au déclenchement du premier mode de fissuration. Sur le fuselage pastille polydispense, deux tirages supplémentaires ont été testés. Les tirages 6 et 9 ont été choisis car :

- le tirage 6 à un niveau de contraintes principales max similaires au tirage 7 (541 contre 554 MPa) mais une contrainte moyenne dans la matrice plus élevée (35 contre 28 MPa). Ce tirage nous permet d'évaluer l'influence de la contrainte moyenne dans la matrice sur la fissuration.
- le tirage 9 a une contrainte principale max plus faible que le tirage 7 (525 contre 554 MPa) mais répond de façon similaire pour les contraintes moyennes dans la matrice (27 contre 28 MPa). Ce tirage permet de comparer la fragmentation sur deux maillages dont la réponse mécanique est comparable en moyenne de contrainte.

Le même chargement, sous les mêmes conditions de calcul que le tirage 7 présenté au paragraphe 5.2.3 (contrainte à rupture σ_M de 100 MPa et ténacité de $0.03 J/m^2$) sont appliquées aux tirages 6 et 9. Les paramètres du calcul sont rappelés tableau 5.3).

Le tableau 5.5 et de la figure 5.14 donnent l'évolution de la pression moyenne dans les bulles et les valeurs de la pression d'amorçage pour les trois tirages, comprise entre 117 MPa et 125 MPa. Il existe moins d'1 % d'écart entre les trois tirages. L'évolution de la fissuration est similaire dans ces trois cas : trois amorces de fissure sont visibles sur chaque tirage. Les deux premières dépressurisations ont le

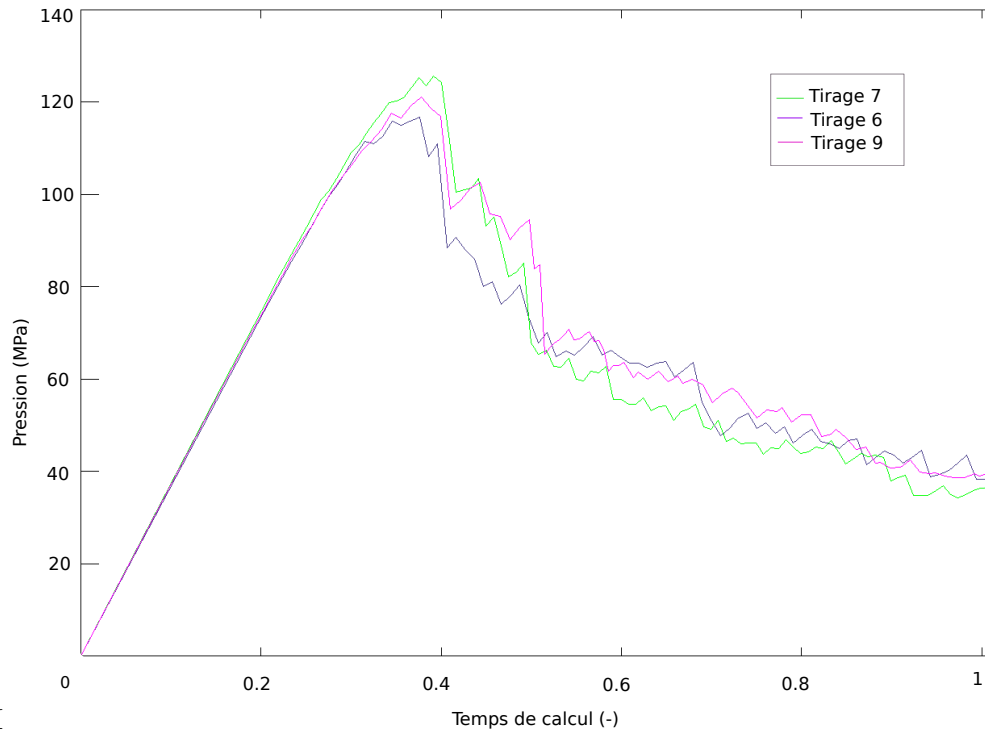


FIGURE 5.14 – Pression moyenne dans les bulles pour les tirages 7, 6 et 9 d’un fuseau disque polydisperse.

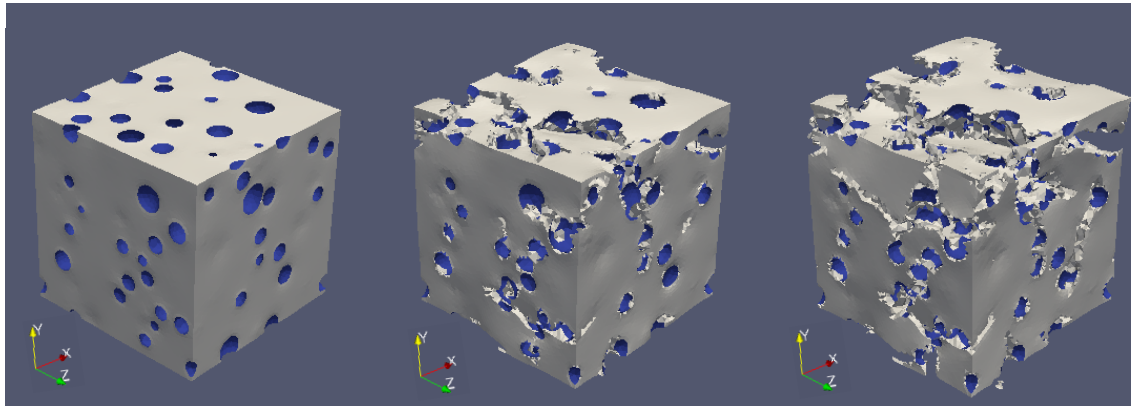
même comportement : elles apparaissent à des itérations proches et la variation de pression sont de même ordre entre les tirages. Le comportement à rupture est quasi identique sur ces tirages.

Tirage	Pression à rupture (MPa)	Éléments rompus	Proportion d’éléments rompus (%)	Surface ouverte (mm ²)
7 (ref)	125	8946	4.3	4.04e ⁻⁴
6	117	11235	5.6	4.81e ⁻⁴
9	121	8166	4.0	3.83e ⁻⁴

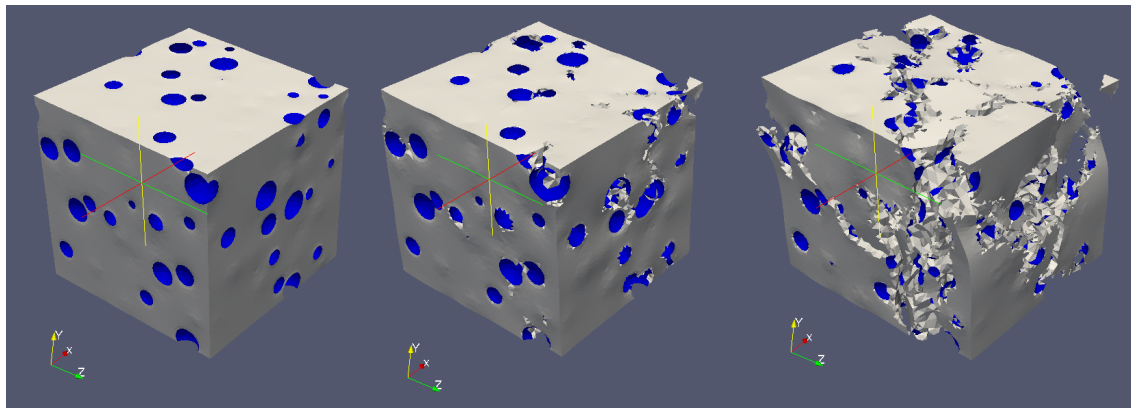
TABLE 5.5 – Comparaison des résultats de fragmentation obtenus sur trois tirages du fuseau disque polydisperse

Les images 5.15 montrent que les trajets de fissurations sont cependant significativement différents d’un tirage à l’autre. Ceci est lié à aux différences de répartition spatiale des bulles d’un tirage à l’autre. A distribution et taux de porosité identique, la surface et la proportion d’éléments rompus sont différentes. Le tirage 6 est le plus endommagé avec ses 5,6 % d’éléments rompus et possède une surface de fissure supérieure aux deux autres tirages. Il existe un écart maximal de 26 % sur ce paramètre.

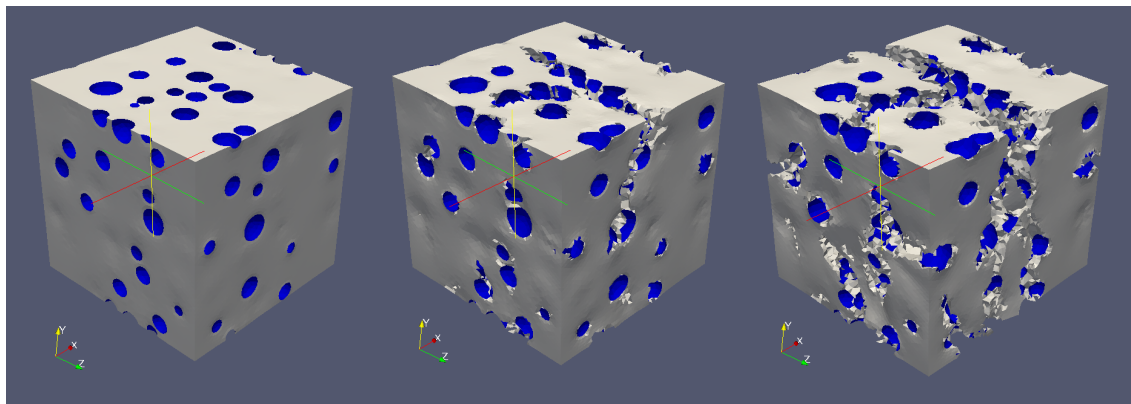
En terme de fragmentation, les trois tirages ne semblent pas donner des fragments de mêmes dimensions, notamment sur le tirage 6 où des petits fragments sont formés à la fin du chargement. La taille des fragments est cependant de même ordre. Ces résultats mettent en évidence principalement un effet du tirage sur les chemins de fissuration sans changer significativement les pressions critiques et le nombre de fragments. Une analyse statistique sur un plus grand nombre de tirages peut être menée pour affiner l’importance du tirage sur les modes de fissuration.



(a) tirage 7



(b) tirage 6



(c) tirage 9

FIGURE 5.15 – Formation de fragments sur trois tirages du fuseau pastille polydisperse. A gauche, état initial sain du VER. Au centre, état du VER à l’instant du premier mode de fissuration. A droite, état du combustible en fin d’essai.

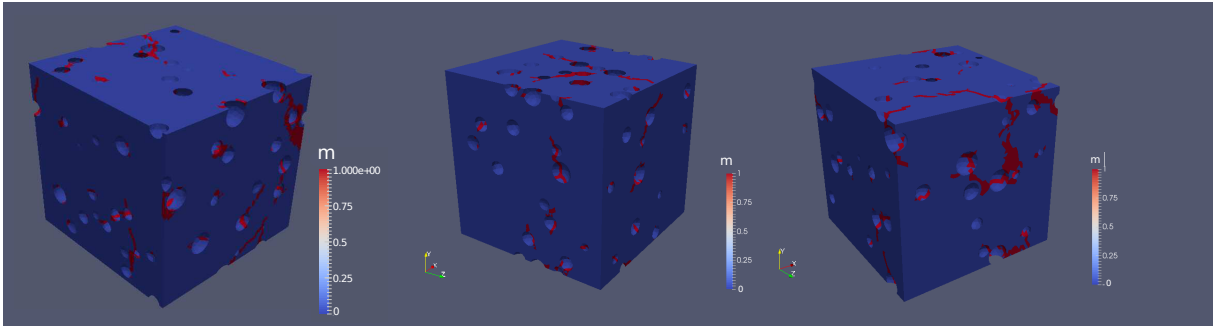


FIGURE 5.16 – Premier mode de fissuration pour les trois tirages (7 - 6 - 9)

5.4 Validation des résultats

Les calculs de fissurations et le nombre de fragments formés peuvent être comparés aux essais expérimentaux disponibles sur pastilles ou disques combustibles. Il existe deux types de grandeurs mesurables à cette échelle du combustible dans les essais de transitoire thermique : le relâchement gazeux et la taille des fragments du combustible sur disques de combustible totalement restructuré HBS.

5.4.1 Recalage de la contrainte à rupture sur un essai de recuit thermique

Ce paragraphe présente une méthode de recalage de la contrainte à rupture, σ_M , illustrée sur le fuseau pastille polydisperse. La figure 5.17 représente l'évolution de la température et l'estimation du RGF cumulé en fonction du temps lors d'un essai de recuit thermique. Le protocole de recalage est décomposé en trois étapes :

1. sur un essai de recuit thermique, le début du relâchement est associé la première rupture dans le matériau. Elle traduit la création d'une fissure débouchante sur un volume libre permettant le relâchement des gaz de fission stockés dans les bulles intergranulaires. Ce relâchement est initié à une température, ici appelée $T_{\text{experimentale}}$.
2. A partir de $T_{\text{experimentale}}$, il est possible de remonter à la valeur de la pression d'amorçage $p_{\text{experimentale}}$. Elle est déterminée avec une loi d'état, à condition de connaître la quantité moyenne de gaz dans une bulle et le volume atomique moyen occupé par le xénon dans la bulle. Ici, le rayon moyen d'une bulle est d'environ $1 \mu\text{m}$. Dans notre modélisation, les recommandations de MARGARET [Noi11], sont d'utiliser la loi de Van Der Waals pour les tailles de bulles présentes :

$$p_{\text{experimentale}} = \frac{RT_{\text{experimentale}}}{(V - b_{VM})} - \frac{a_{VM}}{V^2} \quad (5.25)$$

avec :

- R , constante des gaz parfaits, $8.314 \text{ Pa.m}^3.\text{mol}^{-1}.\text{K}^1$.
 - a_{VM} , constante ; $0.4192 \text{ Pa.m}^6.\text{mol}^{-2}$.
 - b_{VM} , constante ; $5.12\text{e-}5 \text{ m}^3.\text{mol}^{-1}$.
 - V , volume de la bulle moyenne, en $\text{m}^3.\text{mol}^{-1}$.
3. Une fois la pression expérimentale de rupture déterminée, la contrainte à rupture σ_M peut être ajustée afin de faire correspondre la pression d'amorçage du calcul, à la pression de rupture de l'essai. Dans le cas de la loi DDFI2, la pression d'amorçage correspond à la pression moyenne à l'instant précédent la première dépressurisation. La valeur de la contrainte de rupture donnant la pression de rupture de l'essai sera appelée contrainte à rupture recalée.

Il est ainsi possible de faire correspondre la pression à rupture de la simulation à l'instant de première fissuration à la pression expérimentale de relâchement.

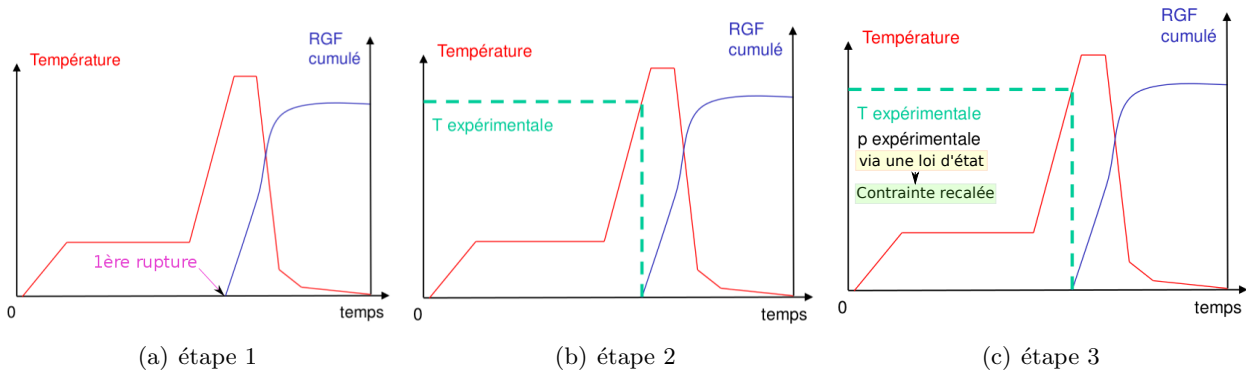


FIGURE 5.17 – Méthode de recalage sur la pression pour trouver la contrainte à rupture σ_M

Pour illustrer la méthodologie, un exemple de l'influence de la contrainte seuil sur le comportement à rupture est donné pour quatre valeurs de la contrainte à rupture : 60, 80, 100 ou 120 MPa figure 5.17. Le calcul est réalisé sous les mêmes hypothèses que précédemment, avec un chargement dans les bulles similaire sur le tirage de référence du fuseau polydisperse pastille. La figure 5.18 montre les résultats du posttraitement de pression moyenne au cours du chargement dans les bulles. Les pressions d'amorçage identifiées sont respectivement de 76, 103, 122 et 146 MPa. Abaisser la contrainte à rupture permet de réduire la pression d'amorçage dans les simulations pour recaler sur la valeur de pression expérimentale.



FIGURE 5.18 – Valeurs de la pression moyenne d'amorçage de fissure en fonction de la contrainte à rupture, donnée d'entrée du calcul.

Résultats expérimentaux disponibles. Pour valider les simulations, il existe des résultats d'essais de relâchement de gaz lors d'un APRP réalisés dans le dispositif MERARG [PCC⁺15] sur des disques de combustibles UO₂ irradiés fort taux complètement restructurés HBS. Ce moyen d'essai permet de simuler des recuits thermiques avec un suivi en ligne des relâchements de gaz de fission et ainsi que de déterminer l'apparition de la première fissure et de la pression d'amorçage correspondante. Les

essais de recuits thermiques réalisés sur disques irradiés à 103.5 GWj/tM au cours du programme NFIR [NFI11] peuvent aussi être utilisés. Sous une rampe à 0.2 °C/sec jusqu'à 1200 °C, deux bouffées de relâchement sont identifiées : la première vers 880 °C contribuant à 25 % du relâchement total, et une seconde à 1110 °C, contribuant à 75 %. Ces bouffées de relâchement sont interprétées comme l'initiation de nouvelles fissures qui vidangent le gaz dans les bulles en les connectant au volume libre du crayon. La pression d'amorçage correspondante à la température du relâchement est déterminée avec la loi de Van Der Waals 5.25 et l'approximation des quantités de gaz CARACAS. La température d'amorçage correspondrait ici à une pression dans les bulles d'environ 79 MPa, soit une contrainte à rupture de 60 MPa suivant les résultats de la figure 5.17.

Il est possible de réaliser une estimation du relâchement des gaz par les bulles traversées par une fissure dans nos calculs. Pour cela, nous considérons que si une bulle est dépressurisée, tout le gaz qu'elle contient est intégralement relâché. Le volume de gaz est identique à celui de la bulle. La figure 5.19 montre l'estimation du relâchement de gaz cumulé en fonction du temps sur le fuseau. Les nombres verts donnent la contribution au relâchement de chaque dépressurisation de bulle (chutes de pression de la courbe rouge).

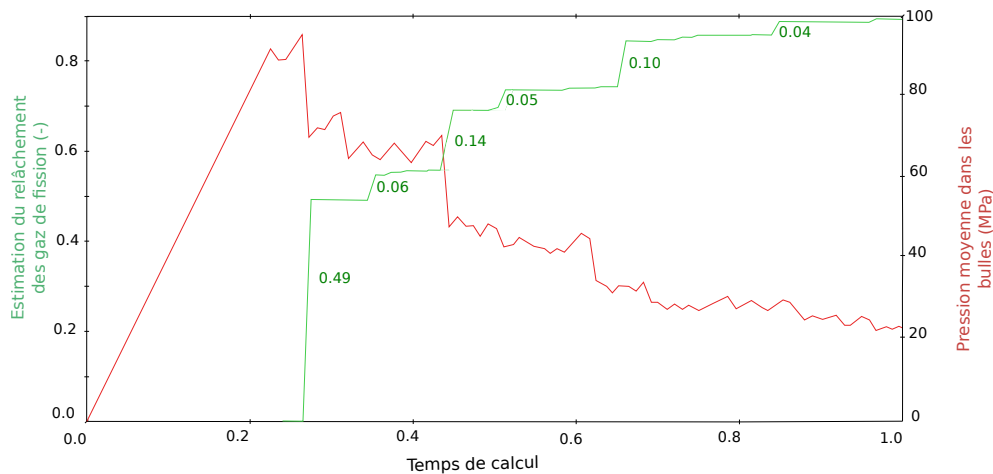


FIGURE 5.19 – Estimation des RGF et de la pression moyenne dans les bulles sur un VER polydisperse disque.

Dans notre simulation, les fissures apparaissent les unes après les autres et provoquent un relâchement par palier. Ce comportement est plutôt similaires aux observations expérimentales où le relâchement est réalisé par des bouffées. La quantité de gaz relâché est évaluée lors de la première dépressurisation de 49 % du volume total des bulles, puis 14% à la seconde dépressurisation dans notre simulation (seconde dépressurisation importante). Dans notre modèle, le relâchement en fin d'essai est de 100 %, c'est à dire que toutes les bulles sont traversées par une fissure à la fin du chargement qui surestime nettement la pression induite par les transitoires thermiques représentatifs des conditions accidentelles.

La comparaison directe du relâchement calculé avec l'essai reste cependant limitée. En effet, notre modèle ne prend pas en compte la connexion des fissures avec les surfaces libres des macro-fragments (l'hypothèse est que dès qu'une fissure amorce prêt d'une bulle, celle-ci se vidange complètement). Dans notre cas et à notre échelle, les fissures ne sont en connexion qu'avec les faces du VER périodique, c'est à dire qu'elles ne sont pas forcément débouchantes sur un volume libre du crayon en entraînant systématiquement le relâchement du gaz. Cette méthode de comptage surévalue donc le relâchement du combustible. Ce point met en avant la limite de validation sur les dimensions de notre VER à l'échelle microscopique. Néanmoins, le mécanisme de relâchement par bouffée est qualitativement simulé dans ce calcul.

5.4.2 Comparaison des fragments formés

Les disques de combustibles après les essais de recuits thermiques sont passés dans des tamis de différentes dimensions, de la plus grande à la plus fine. Il est ainsi possible d'identifier un fuseau de taille de fragments et la fraction volumique de chaque classe de taille de fragments. Aujourd'hui les examens après irradiation disponibles que ce soient sur les essais réalisés à Halden ou Studsvik, comme ceux du LECA STAR au CEA [NT16], disposent de tamis n'excédant pas les $10\mu\text{m}$ de finesse. Or, notre VER ne fait que $9\mu\text{m}$ de côté, ce qui est trop petit pour envisager une validation et une confrontation expérimental/simulation. Pour pouvoir réaliser cette validation il est absolument nécessaire d'accroître la taille de nos VER, ce qui passe par l'amélioration des performances de l'outil de simulation.

5.5 Conclusion du chapitre

Ce chapitre a présenté l'étape de localisation de la méthode micromécanique. Ces calculs par éléments finis sur les VER de la zone HBS (définis au chapitre 4) ont été menés dans le but :

1. d'effectuer une première comparaison des résultats de fissuration via le calcul en champs complets aux résultats expérimentaux.
2. d'établir les modes de rupture servant de données d'entrée au critère de rupture homogénéisé.

Pour modéliser le comportement fragile avec une propagation de fissure instable, nous avons :

- Décrit dans une première partie le modèle de comportement local DDIF2, sélectionné pour sa capacité à simuler l'endommagement et la propagation de la fissure ;
- Défini les propriétés matériau à rupture, la ténacité G_c et la contrainte à rupture σ_M en analysant les données matériau disponibles dans la littérature sur la zone HBS de l' UO_2 . Un jeu de paramètres à rupture a été fixé (grâce à l'analyse du taux de restitution de l'énergie donné par la méthode *Gtheta*) pour reproduire les conditions d'amorçage de fissure s'initiant des bulles HBS (à géométrie singulière) dans le VER comportant des bulles sphériques ;
- Etabli un pilotage en déformation des bulles pour assurer la convergence des calculs après l'apparition de la première fissure. Une déformation thermique fictive est appliquée aux bulles, considérées comme un milieu élastique homogène. Pour tenir compte de la répartition aléatoire des bulles dans le VER, ce champ est non uniforme entre les bulles afin d'obtenir un chargement homogène en pression au cours du chargement. Les propriétés mécaniques des bulles sont choisies afin de garantir un état de contrainte hydrostatique ;
- Déterminé les modes de fissuration correspondant à un état de fragmentation du combustible. En connaissant la température en amont de la rupture de la gaine, il est possible d'obtenir l'état de fissuration et d'identifier les fragments formés avant la dépressurisation de la gaine ;
- Proposé en dernier lieu une méthode d'identification de la contrainte à rupture avec un recalage de la simulation sur l'instant du premier relâchement de gaz de fission de l'essai.

Au final, les calculs reproduisent l'apparition de plusieurs fissures, qui se propagent de façon instable de bulle en bulle. Ce mécanisme est en adéquation avec l'hypothèse de comportement fragile et l'observation expérimentale (bouffées de relâchement de gaz de fission traduisant l'apparition de plusieurs fissures traversant les bulles). Les perspectives identifiées concernent :

- l'amélioration de la représentativité en attribuant les propriétés mécaniques (module de compressibilité) des gaz de fission dans les bulles ;
- Le pilotage de la déformation thermique fictive à chaque pas de temps pour conserver une pression constante dans les bulles non rompues après Le déclenchement de la première fissuration ;
- Augmenter la taille du VER pour pouvoir valider les résultats des tailles de fragments par rapport aux résultats expérimentaux.

Chapitre 6

Établissement d'un critère de rupture homogénéisé pour la zone HBS de la pastille combustible UO_2

Nous cherchons à homogénéiser les résultats obtenus à l'étape de localisation afin d'accéder plus simplement et rapidement à l'état de la zone HBS à l'échelle de la pastille. Pour ce faire, nous proposons dans ce chapitre un modèle homogénéisé inspiré de la méthode NTFA mais dans le cadre nouveau de l'approche variationnelle de Francfort et Marigo [FM88]. Grâce à sa formulation basée sur un principe variationnel, cette approche se prête davantage à l'homogénéisation qu'une formulation du problème par modèle de zones cohésives. Avec cette approche, l'état de fissuration du milieu est obtenu à l'aide d'un principe de minimisation d'énergie, énergie composée de la somme de deux termes représentant respectivement l'énergie élastique potentielle du système et l'énergie dissipée par la fissuration. Les modes de fissuration, m , ont été déterminés au chapitre 5 à l'échelle du VER. Ils sont utilisés comme données d'entrée de notre modèle d'homogénéisation, permettant de lier l'état local à l'état global du combustible à l'échelle supérieure. Bien qu'ils aient été déterminés par le modèle DDFI2, les modes de fissuration auraient pu être obtenus par l'approche variationnelle. Néanmoins, l'obtention des modes par cette dernière approche n'a pas pu être réalisée faute d'implémentation de la loi adéquate dans le code de calcul par éléments finis utilisé, Cast3m [cas90]. Ce travail a été initialisé au sein du laboratoire LSC au CEA Cadarache par T.Helfer et devrait permettre à terme de réaliser un benchmark entre les deux approches.

Le chapitre se compose de trois parties :

- dans un premier temps nous exposerons les équations constitutives du modèle depuis la formulation du problème de localisation. Nous énoncerons les hypothèses de résolution du problème de minimisation qui conduisent à l'expression du taux de restitution de l'énergie G^{hom} , fonction des déformations macroscopiques, $\bar{\epsilon}$, et de la pression, p , dans les bulles HBS. La comparaison par un critère de type Griffith entre la valeur de G^{hom} et une valeur seuil G_{max} permet de déterminer si le point matériel est rompu ou non. Ce modèle est appliqué en chaque point matériel et donne l'état (rompu ou non rompu) à l'échelle macroscopique.
- Dans une seconde partie, nous détaillerons la méthode d'identification des paramètres du modèle, qui nécessite de réaliser des calculs par éléments finis sur le VER, soumis à des chargements élémentaires. Ces calculs permettent de déterminer la valeur des trois tenseurs A_{ijkl} , B_{ij} et C (respectivement d'ordre 4, 2 et 0), intervenant dans l'expression du taux de restitution de l'énergie G^{hom} .
- Enfin nous discuterons des moyens de validation de ce modèle, ainsi que des avantages et limitations dans une troisième et dernière partie. A terme, ce modèle est destiné à être implé-

menté dans un code de calcul du crayon combustible cible (ex : Alcyone [MGS⁺14], CYRANO3 [BTL⁺08]).

6.1 Obtention du critère

Pour le problème qui nous intéresse ici (milieu poreux avec cavités pressurisées), l'approche variationnelle régularisée du modèle de Francfort et Marigo [FM88] peut être écrite, à l'instant t_{n+1} , sous la forme :

$$\min_{\mathbf{u} \in K(\bar{\varepsilon})} \min_{\alpha \geq \alpha_n} \left[\int_{V-T} w_l(\mathbf{u}, \alpha) dx - L(\mathbf{u}) \right], \quad (6.1)$$

où α_n désigne le champ α connu à l'instant t_n , $\bar{\varepsilon}$ la déformation macroscopique à l'instant t_{n+1} , $K(\bar{\varepsilon})$ l'ensemble des champs de déplacement cinématiquement admissibles avec $\bar{\varepsilon}$,

$$K(\bar{\varepsilon}) = \{\mathbf{u} = \bar{\varepsilon} \cdot \mathbf{x} + \mathbf{v}, \mathbf{v} \text{ périodique sur } \partial V\}, \quad (6.2)$$

V le volume élémentaire représentatif, T la partie de V occupée par les cavités et $L(\mathbf{u})$ le travail des efforts extérieurs donnés dans le déplacement \mathbf{u} ,

$$L(\mathbf{u}) = \int_{\partial T} -p \mathbf{n} \cdot \mathbf{u} dS, \quad (6.3)$$

avec p la pression interne dans les cavités à l'instant t_{n+1} et \mathbf{n} la normale unitaire orientée vers l'intérieur des cavités. Par ailleurs, reprenant pour $w_l(\mathbf{u}, \alpha)$ l'expression (2.12) proposée dans Pham et al. [PM10b], on a :

$$w_l(\mathbf{u}, \alpha) = \frac{1}{2} \mathbf{A}(\alpha) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) + w(\alpha) + \frac{1}{2} w_1 l^2 \nabla \alpha \nabla \alpha, \quad (6.4)$$

où nous rappelons que $\mathbf{A}(\alpha)$ représente le tenseur d'élasticité du matériau fissuré, $w(\alpha)$, l'énergie dissipée pour passer de l'état vierge à l'état fissuré α , $w_1 = w(1)$ et l une longueur interne caractéristique du milieu liée à $w(\alpha)$ et à la ténacité G_c par l'égalité (2.13).

A l'instar de la méthode NTFA, nous introduisons ici la notion de mode de fissuration et le champ α est décomposé sous la forme séparée :

$$\alpha(x, t) = \xi(t) m(x), \quad (6.5)$$

où $\xi(t)$ est une variable scalaire dépendant uniquement du temps et $m(x)$ un champ scalaire ne dépendant que de la position x au sein du VER destiné à porter l'information sur le mode de fissuration du milieu. Ces deux quantités $\xi(t)$ et $m(x)$ prennent des valeurs comprises entre 0 et 1. Quand $\xi(t)$ est proche de 1, le champ $\alpha(x, t)$ est proche de $m(x)$ prennent des valeurs comprises entre 0 et 1. Quand $\xi(t)$, est proche de 1, le champ $\alpha(x, t)$ est proche de $m(x)$, qui correspond au mode de fissuration identifié à l'aide des calculs non linéaires du chapitre 5. Avec l'hypothèse (6.5), le problème variationnel (6.1) devient :

$$\min_{\mathbf{u} \in K(\bar{\varepsilon})} \min_{\xi \geq \xi_n} \left[\int_{V-T} w_l(\mathbf{u}, \xi m) dx - L(\mathbf{u}) \right]. \quad (6.6)$$

Le problème (6.6) peut être encore réécrit sous la forme :

$$\min_{\xi \geq \xi_n} \tilde{J}(\bar{\varepsilon}, p, \xi), \quad (6.7)$$

où

$$\tilde{J}(\bar{\varepsilon}, p, \xi) = \tilde{W}(\bar{\varepsilon}, p, \xi) + \tilde{w}(\xi), \quad (6.8)$$

avec

$$\tilde{W}(\bar{\varepsilon}, p, \xi) = \min_{\mathbf{u} \in K(\bar{\varepsilon})} \left[\int_{V-T} \frac{1}{2} \mathbf{A}(\xi m) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) dx - L(\mathbf{u}) \right], \quad (6.9)$$

et

$$\tilde{w}(\xi) = \int_{V-T} w(\xi m) dx + \frac{1}{2} w_1 l^2 \xi^2 \int_{V-T} \nabla m \nabla m dx. \quad (6.10)$$

Avec ces notations, on notera la grande similitude de structure entre le problème variationnel (6.7)-(6.10) et le problème variationnel (2.22)-(2.24) obtenu par la méthode NTFA appliquée à des constituants présentant un comportement standard généralisé. Reprenant la démarche suivie dans ce dernier cas, on remarque en premier que l'équation d'Euler-Lagrange associée au problème de minimisation (6.7) s'écrit :

$$\frac{\partial \tilde{W}}{\partial \xi}(\bar{\varepsilon}, p, \xi) + \frac{\partial \tilde{w}}{\partial \xi}(\xi) = 0. \quad (6.11)$$

Avec l'expression (6.10) de $\tilde{w}(\xi)$, il vient :

$$\frac{\partial \tilde{w}}{\partial \xi}(\xi) = \int_{V-T} w'(\xi m) m dx + w_1 l^2 \xi \int_{V-T} \nabla m \nabla m dx. \quad (6.12)$$

Par ailleurs, en notant G_ξ^{hom} le taux de restitution de l'énergie défini par :

$$G_\xi^{hom} = -\frac{\partial \tilde{W}}{\partial \xi}(\bar{\varepsilon}, p, \xi), \quad (6.13)$$

on obtient en utilisant les égalités (6.11) et (6.12) le critère :

$$G_\xi^{hom} = \int_{V-T} w'(\xi m) m dx + w_1 l^2 \xi \int_{V-T} \nabla m \nabla m dx. \quad (6.14)$$

Arrivé à ce stade, notons \mathbf{u}^ξ le champ de déplacement solution du problème de minimisation (6.9). En utilisant la définition de $\tilde{W}(\bar{\varepsilon}, p, \xi)$, on obtient :

$$\frac{\partial \tilde{W}}{\partial \xi} = \int_{V-T} \frac{1}{2} \mathbf{A}'(\xi m) m : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}^\xi) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}^\xi) dx + \int_{V-T} \mathbf{A}(\xi m) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}^\xi) : \boldsymbol{\varepsilon}\left(\frac{\partial \mathbf{u}^\xi}{\partial \xi}\right) dx - L\left(\frac{\partial \mathbf{u}^\xi}{\partial \xi}\right). \quad (6.15)$$

Le champ du déplacement \mathbf{u}^ξ solution du problème (6.9) est tel que :

$$\int_{V-T} \mathbf{A}(\xi m) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}^\xi) : \boldsymbol{\varepsilon}(\delta \mathbf{u}) dx = L(\delta \mathbf{u}), \quad (6.16)$$

pour tout champ $\delta \mathbf{u}$ périodique sur ∂V . De plus, puisque $\mathbf{u}^\xi = \bar{\varepsilon} \cdot \mathbf{x} + \mathbf{v}^\xi$ avec \mathbf{v}^ξ périodique sur ∂V , on a :

$$\frac{\partial \mathbf{u}^\xi}{\partial \xi} = \frac{\partial \mathbf{v}^\xi}{\partial \xi}, \text{ périodique sur } \partial V. \quad (6.17)$$

Il en résulte que :

$$\int_{V-T} \mathbf{A}(\xi m) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}^\xi) : \boldsymbol{\varepsilon}\left(\frac{\partial \mathbf{u}^\xi}{\partial \xi}\right) dx = L\left(\frac{\partial \mathbf{u}^\xi}{\partial \xi}\right), \quad (6.18)$$

et par suite :

$$\frac{\partial \tilde{W}}{\partial \xi} = \int_{V-T} \frac{1}{2} \mathbf{A}'(\xi m) m : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}^\xi) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}^\xi) dx. \quad (6.19)$$

Ainsi, au final, le problème de minimisation (6.7) conduit au critère suivant régissant l'évolution de ξ :

$$G_{\xi}^{hom} = -\frac{\partial \tilde{W}}{\partial \xi} = \int_{V-T} -\frac{m}{2} \mathbf{A}'(\xi m) : \varepsilon(\mathbf{u}^{\xi}) : \varepsilon(\mathbf{u}^{\xi}) dx = \int_{V-T} w'(\xi m) m dx + w_1 l^2 \xi \int_{V-T} \nabla m \nabla m dx. \quad (6.20)$$

Cherchant à aboutir à un critère de rupture et non à décrire l'évolution en ξ en fonction du chargement, seul le cas $\xi = 1$ est considéré. Prenant $\xi = 1$ dans (6.20), le critère de rupture s'écrit :

$$G^{hom} = \int_{V-T} -\frac{m}{2} \mathbf{A}'(m) : \varepsilon(\mathbf{u}^1) : \varepsilon(\mathbf{u}^1) dx = G_{max}, \quad (6.21)$$

en notant G_{max} le seuil critique dont l'expression est donnée par

$$G_{max} = \int_{V-T} w'(m) m dx + w_1 l^2 \int_{V-T} \nabla m \nabla m dx. \quad (6.22)$$

Dans (6.21), notons que \mathbf{u}^1 désigne le champ de déplacement solution du problème (6.9) pour $\xi = 1$. Ainsi, \mathbf{u}^1 est solution du problème local :

$$P_1(\bar{\varepsilon}, p) \begin{cases} \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} & = & 0 \text{ dans } V-T, \\ \boldsymbol{\sigma} & = & \mathbf{A}(m) : \varepsilon(\mathbf{u}^1) \text{ dans } V-T, \\ \mathbf{u}^1 & = & \bar{\varepsilon} \cdot \mathbf{x} + \mathbf{v}^1 \text{ dans } V-T, \\ \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} & = & -p \cdot \mathbf{n} \text{ dans } \partial T, \\ \mathbf{v}^1 & \text{périodique, } & \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} \text{ antipériodique sur } \partial V. \end{cases} \quad (6.23)$$

m étant supposé déterminé, notons que \mathbf{u}^1 est donc solution d'un problème d'équilibre élastique dont la rigidité $\mathbf{A}(m(x))$ dépend du point x considéré dans $V-T$. En vertu de la linéarité du problème par rapport aux deux variables $\bar{\varepsilon}$ et p , \mathbf{u}^1 peut être décomposé en la somme :

$$\mathbf{u}^1 = \mathbf{u}^{kl} \bar{\varepsilon}_{kl} + \tilde{\mathbf{u}} p, \quad (6.24)$$

où \mathbf{u}^{kl} et $\tilde{\mathbf{u}}$ sont respectivement les solutions des problèmes élémentaires $P_1(i^{kl}, 0)$ et $P_1(0, 1)$ avec $i_{ij}^{kl} = \frac{1}{2}(\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk})$.

Au final, en introduisant la décomposition (6.24) dans l'expression (6.21) du taux de restitution de l'énergie G^{hom} , on obtient :

$$G^{hom}(\bar{\varepsilon}, p) = A_{ijkl} \bar{\varepsilon}_{ij} \bar{\varepsilon}_{kl} + 2B_{ij} \bar{\varepsilon}_{ij} p + Cp^2, \quad (6.25)$$

où les composantes A_{ijkl} , B_{ij} , C sont indépendantes des variables d'état $\bar{\varepsilon}$ et p du système et peuvent être calculées une fois pour toute à l'aide des expressions :

$$\begin{cases} A_{ijkl} & = & \int_{V-T} -\frac{m}{2} \mathbf{A}'(m) : \varepsilon(\mathbf{u}^{ij}) : \varepsilon(\mathbf{u}^{kl}) dx, \\ B_{ij} & = & \int_{V-T} -\frac{m}{2} \mathbf{A}'(m) : \varepsilon(\mathbf{u}^{ij}) : \varepsilon(\tilde{\mathbf{u}}) dx, \\ C & = & \int_{V-T} -\frac{m}{2} \mathbf{A}'(m) : \varepsilon(\tilde{\mathbf{u}}) : \varepsilon(\tilde{\mathbf{u}}) dx. \end{cases} \quad (6.26)$$

La partie suivante se propose de détailler la procédure de calcul de ces coefficients.

6.2 Calcul des paramètres du critère

Les paramètres inconnus A_{ijkl} , B_{ij} et C ne dépendent que des champs de déformation élémentaires $\varepsilon(\mathbf{u}^{ij})$ et $\varepsilon(\tilde{\mathbf{u}})$, Nous détaillons dans la suite les calculs par éléments finis à réaliser pour déterminer la valeur de ces différents paramètres.

1^{ere} étape : calcul de A

Les composantes A_{ijkl} de ce tenseur du quatrième ordre ne dépendent que des solutions $\varepsilon(\mathbf{u}^{ij})$. La démarche consiste à résoudre, par éléments finis dans notre cas, le problème d'équilibre élastique suivant sur le VER retenu :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{0} & \text{dans V-T,} \\ \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{A}(m) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}) & \text{dans V-T,} \\ \mathbf{u} = \mathbf{i}^{ij} \cdot \mathbf{x} + \mathbf{v} & \text{dans V-T,} \\ \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} = \mathbf{0} & \text{sur } \partial T, \\ \mathbf{v} \text{ périodique, } & \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} \text{ antipériodique sur } \partial V, \end{array} \right. \quad (6.27)$$

avec $i_{kl}^{(ij)} = \frac{1}{2} (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk})$, pour i, j, k et l prenant les valeurs de 1 à 3. Ces six chargements élémentaires permettent de déterminer complètement les six champs de déformations $\varepsilon(\mathbf{u}^{ij})$: trois extensions et trois glissements dans chaque direction du repère principal du VER.

2nd étape : calcul de C

Ce paramètre scalaire ne dépend que de la solution $\varepsilon(\tilde{\mathbf{u}})$. Pour identifier la valeur de C , il s'agit de résoudre par éléments finis le problème suivant sur le VER retenu :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{0} & \text{dans V-T,} \\ \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{A}(m) : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{v}) & \text{dans V-T,} \\ \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} = -\mathbf{n} & \text{sur } \partial T, \\ \mathbf{v} \text{ périodique, } & \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{n} \text{ antipériodique sur } \partial V. \end{array} \right. \quad (6.28)$$

Un seul problème est donc ici à résoudre avec un chargement de pression unitaire dans les bulles à déformation macroscopique nulle.

3^{eme} étape : calcul de B

Les composantes B_{ij} de ce tenseur d'ordre deux sont dépendantes à la fois des solutions $\varepsilon(\mathbf{u}^{ij})$ et $\varepsilon(\tilde{\mathbf{u}})$. Les résultats des calculs précédents sont à utiliser pour obtenir ces composantes.

6.3 Choix des fonctions $\mathbf{A}(\alpha)$ et $w(\alpha)$

Le choix des fonctions $\mathbf{A}(\alpha)$ et $w(\alpha)$ dépend pour beaucoup des propriétés d'écroissage que l'on souhaite donner au modèle. Différents choix de fonction sont étudiés dans Amor [AMM09] sur l'exemple analytique de la barre en extension. Mentionnons ici en particulier les deux lois :

$$\mathbf{A}(\alpha) = \left((1 - \alpha)^2 + k \right) \mathbf{A}_0, \quad w(\alpha) = w_1 \alpha, \quad (6.29)$$

et

$$\mathbf{A}(\alpha) = \left((1 - \alpha)^2 + k \right) \mathbf{A}_0, \quad w(\alpha) = w_1 \alpha^2, \quad (6.30)$$

pour lesquelles les conditions de gamma-convergence évoquées au paragraphe 2.3.5 du chapitre 2 sont satisfaites. Pour ces deux lois, qui diffèrent dans l'expression de l'énergie dissipée considérée, \mathbf{A}_0 représente le tenseur de rigidité du matériau sain et k est un reste de rigidité pour éviter la perte

de positivité de A lorsque $\alpha=1$. Renvoyant le lecteur intéressé par plus de détails à la thèse d'Amor [AMM09], disons simplement ici que la loi (6.29), dont l'énergie dissipée est linéaire en α présente dans sa réponse contrainte-déformation une phase élastique suivie d'une phase adoucissante en loi puissance. α est nul dans la phase élastique et la contrainte maximale atteinte σ_M est donnée par :

$$\sigma_M = (1 + k)\sqrt{w_1 E_0}, \quad (6.31)$$

avec E_0 le module d'Young du matériau sain. Pour la loi (6.30), qui coïncide avec celle considérée par Bourdin [Bou98], Bourdin et al [BFJJ00] pour régulariser le problème de rupture initial, il est montré que la réponse ne présente pas de phase élastique. Le matériau fissure dès le premier chargement mais la courbe contrainte-déformation obtenue présente une première phase durcissante avant de décroître. La contrainte maximale atteinte est dans ce cas donnée par :

$$\sigma_M = \frac{3\sqrt{3}}{8\sqrt{2}}(1 + k)\sqrt{w_1 E_0}. \quad (6.32)$$

6.4 Validation du critère

Le critère identifié doit être validé à partir d'essais analytiques proposés sur les disques d' UO_2 restructurés totalement ayant subis un transitoire thermique dans le dispositif MERARG [PCC⁺15].

Pour que la validation soit correcte, il est nécessaire d'identifier le bon instant de rupture. En effet, il faut que l'état de fragmentation du combustible numérique soit identifié à la température finale du transitoire expérimental. Une méthode d'équivalence en température a été proposée au chapitre 5 pour permettre la correspondance pression/température. Une fois les modes identifiés pour la température cible, les paramètres du critère sont identifiés. La validation est réalisée avec un calcul sur le VER. Différents cas tests sont envisagés :

1. chargement des bulles en pression à contrainte macroscopique nulle. Appliqué au VER, ce chargement doit permettre de retrouver a minima le même niveau de déformation que celui obtenu à la température cible. Il permet de retrouver les résultats obtenus lors du premier instant de rupture (à l'instant précédent la rupture de la gaine).
2. chargement des bulles en pression avec contrainte macroscopique hydrostatique imposée. Ce chargement impose une contrainte macroscopique qui maintient la cohésion du VER. Il est possible d'identifier un second mode de fissuration à la température maximale de l'essai. Il est représentatif de l'état de la zone HBS en fin d'essai.
3. cas d'une extension de la validité au centre de la pastille. Un chargement mixte peut être appliqué afin de représenter une triaxialité réaliste du combustible au centre de la pastille.

Ces conditions ne sont pas exhaustives et peuvent être complétées pour représenter au mieux les conditions de chargement réel des zones de la pastille et de leur sollicitation thermique.

Prévision de la fissuration de la zone HBS par l'implémentation dans un code de calcul du crayon combustible

Au final, ce modèle permet de déterminer en chaque point matériel, si le matériau est rompu suivant le mode de fissuration m (identifié lors de l'étape de localisation) en comparant G^{hom} , le taux de restitution de l'énergie à la valeur seuil G_{max} avec un critère de type Griffith :

$$G \leq G_{max}, \quad (6.33)$$

où l'expression de G_{max} est ici donnée par l'équation (6.22). Une fois le modèle identifié et validé sur des essais unitaires expérimentaux, celui-ci doit être intégré dans un code de simulation du comportement thermomécanique du crayon combustible (ALCYONE [MGS⁺14] ou CYRANO [BTL⁺08] par exemple). Le code reçoit en entrée :

1. $\bar{\epsilon}$ la déformation macroscopique,
2. p la pression moyenne dans les bulles HBS, estimée par une modèle de gaz avancé comme CARACAS[JSB⁺14] (ou MARGARET [Noi11]).

Le modèle informe sur l'intégrité du matériau et indique s'il est sain ou s'il est fissuré macroscopiquement selon les modes identifiés au chapitre 5. Ces données sont fournies à chaque pas de temps et à chaque point d'intégration. Nous pouvons ici définir l'instant de rupture, instant pour lequel, la première fissure macroscopique apparaît.

Par faute de temps, ce modèle n'a pas pu être identifié ni validé à l'échelle de notre VER.

6.5 Bilan du chapitre

Dans ce chapitre, l'établissement d'un critère de rupture homogénéisé pour la zone HBS de l' UO_2 a été exposé. Développé à partir de la méthode NTFA et de l'approche variationnelle de la mécanique de la rupture de Francfort-Marigo, ce critère prévoit le chargement à rupture à l'échelle macroscopique, en se basant sur les hypothèses de résolution de la méthode NTFA. Concrètement cette approche indique si la rupture est survenue ou non en chaque point matériel en comparant le taux de restitution de l'énergie G^{hom} à une valeur seuil critique G_{max} par un critère de type Griffith. L'intégration dans un code crayon est nécessaire pour estimer la fissuration à l'échelle de la zone HBS de la pastille UO_2 . La première étape de mise en œuvre a été de récupérer les modes de fissuration lors de l'étape de localisation et de détailler la procédure de calcul des paramètres du modèle, déterminés grâce à sept calculs élastiques aux éléments finis. Il doit en seconde étape être identifié et validé à des essais unitaires avant d'être implémenté dans un code de calcul crayon. Celui-ci pourra alors reproduire des essais de transitoire thermique pour validation de la fragmentation sur la zone HBS de l' UO_2 .

Parmi les avantages du critère homogénéisé, on peut retenir :

1. qu'il permet de réduire le temps de calcul par rapport à l'application d'un modèle par éléments finis au carré par exemple.
2. Le critère global autorise le passage d'un problème non linéaire à la résolution de sept problèmes élastiques indépendants, avec chacun un chargement élémentaire de pression ou de déformation.

Le critère reste cependant dépendant des modes de fissuration, c'est à dire dépendant de la microstructure et des trajets de chargement identifiés. Il est toutefois possible d'identifier le critère sur différentes microstructures, possédant par exemple une autre fraction volumique de porosité (bulles HBS). Cette démarche permet l'élaboration d'un benchmark prévoyant un encadrement de la fragmentation de la zone HBS de l' UO_2 . Cette étude peut prendre en compte différents fuseaux et taux de porosité afin d'être capable d'évaluer la fragmentation pour un taux de combustion et un rayon de pastille identifié.

L'élaboration de ce critère est une avancée pour l'étude de la fragmentation de la zone HBS de l' UO_2 en conditions accidentelles APRP : jusqu'alors les modèles étaient généralement empiriques et ne reposaient pas sur la microstructure du combustible et ne modélisaient pas les chemins de fissuration. Cependant un travail de mise en œuvre et de validation reste à effectuer pour pouvoir déterminer une distribution de taille de fragments permettant d'alimenter un modèle de relocalisation du crayon combustible.

Conclusion générale

Lors d'un transitoire thermique APRP, les conditions de pression et de température dans le crayon combustible UO_2 entraînent le ballonnement de la gaine, qui se déforme parfois jusqu'à la rupture. La pastille combustible fortement irradiée est fragmentée. En cas de dépressurisation du crayon, une partie des fragments situés à proximité de l'éclatement de la gaine risquent d'être éjectés hors de la gaine. Ces fragments peuvent également se relocaliser dans le volume libre formé par le ballon. L'hypothèse avancée dans ce travail pour expliquer la fragmentation du combustible à fort taux de combustion est que les bulles intergranulaires de gaz de fission se surpressurisent lors la montée en température de l'accident et mènent à la décohésion des joints de grains. La zone restructurée HBS par son fort taux de porosité et sa position en périphérie de pastille, est la partie du combustible la plus à même de se fragmenter et de se relocaliser, voire d'être expulsée lors de la dépressurisation du crayon. Pour cette raison, **ces travaux se focalisent exclusivement sur l'étude de la fragmentation de la zone HBS. L'objectif de la thèse est d'évaluer les conséquences d'un transitoire APRP sur la fragmentation de la zone HBS et de définir un critère de rupture en utilisant une approche micromécanique qui prend en compte la microstructure de la zone HBS et les principes de la mécanique de la rupture dans l'étude de la fragmentation.** Le critère établi doit permettre d'évaluer l'instant de fragmentation, la fraction volumique des fragments formés et la quantité de gaz relâché.

Pour commencer, la phénoménologie accidentelle APRP et les processus pouvant apparaître sous irradiation menant à la formation de la zone HBS ont été décrits. La restructuration particulière de l' UO_2 en HBS apparaît dès 60 GWj/tM local et est issue de l'augmentation du taux de combustion en périphérie de pastille. Elle se caractérise par la recristallisation du matériau en grains submicroniques. Le paramètre clé du comportement de la zone HBS en condition d'APRP est la position des gaz de fission qui précipitent sous la forme de bulles aux joints de grains. Les gaz sont relâchés lors de la fragmentation du combustible. Cette étude a permis de définir le combustible comme un matériau fragile aux températures du transitoire thermique considéré : APRP.

Pour étudier le comportement à rupture sous l'action des bulles pressurisées, nous avons rappelé la démarche générale pour construire un critère de rupture homogénéisé. Parmi les lois de comportement local correspondant aux problématiques de notre étude, nous avons choisi la loi DDIF2 de type zone cohésive, capable de décrire l'amorçage et la propagation de fissure. Une méthode différente s'appuyant sur la NTFA et sur l'approche variationnelle de la rupture est utilisée pour sa formulation facilitant l'homogénéisation.

La première étape de ce développement, **la représentation, consiste à collecter les informations nécessaires sur les bulles HBS pour créer un VER 3D afin de réaliser les calculs éléments finis (lors de la localisation).** Grâce aux données des modèles ALCYONE-CARACAS et aux analyses expérimentales, nous avons acquis les fuseaux de tailles de bulles, les fractions volumiques par classe de bulle, et les pressions dans les bulles HBS. **Trois fuseaux de bulles HBS ont été générés avec une distribution aléatoire, réalisée par un schéma de tirage RSA dans une matrice cubique homogène :**

- **un VER pastille monodisperse :** une représentation simplifiée de la zone HBS avec un seul diamètre de bulles de $1\ \mu\text{m}$ avec 9.01% de la fraction volumique.

- **un VER pastille polydisperse**, correspondant aux analyses des pastilles irradiées en réacteur, comportant trois diamètres de bulles de 0.8, 1 et 1,2 μm , représentant un total de 9.01 % de la fraction volumique.
- **un VER disque polydisperse**, correspondant aux analyses des disques restructurés HBS irradiés en réacteur, avec douze diamètres de bulles entre 0.6 et 2.8 μm , pour une fraction volumique cumulée de 10.6 %.

Cette représentation a fait l'objet d'une validation réalisée à l'aide de la covariance, qui a permis de définir la taille caractéristique de 9 μm pour les trois fuseaux d'intérêt. Les VER ont été discrétisés pour réaliser des calculs éléments finis avec Castem lors de l'étape de localisation.

Avant de passer à l'étude de la fissuration, nous nous sommes interrogés sur la représentativité des VER HBS. Plusieurs tirages de microstructures aléatoires ont été soumis à des analyses en champs complets en considérant un comportement élastique de la matrice. Une étude de convergence au maillage a été réalisée et une taille de maille de référence définie pour notre étude. Ces calculs élastiques permettent une première analyse de la réponse de la matrice au chargement de pression dans les bulles. La reproduction d'un même calcul sur vingt tirages aléatoires du fuseau polydisperse pastille a montré qu'il existait jusqu'à une différence de 24 % sur la contrainte principale max dans la matrice. Cette comparaison n'a pas été menée sur les autres fuseaux HBS et pourrait faire l'objet d'une étude statistique comportant un plus grand nombre de réalisations pour affiner ce résultat. Il est possible de relever les valeurs de contraintes associées à la moyenne de pression dans les bulles lors d'un APRP pour détecter le site d'amorçage de la première fissure dans les éléments les plus chargés en surface d'une bulle. **Cette étape nous permet de choisir un tirage favorisant la fissuration pour les calculs non linéaires.**

Les calculs en champs complets considérant un comportement non linéaire sont réalisés avec le modèle DDIF2. Les propriétés à rupture du matériau en entrée du modèle ont été définies afin de reproduire un amorçage de fissures similaire aux bulles HBS dans le matériau (à la géométrie singulière) dans notre VER (contenant des bulles sphériques). Une analyse du taux de restitution de l'énergie par la méthode G_{theta} a permis de donner une contrainte à rupture et la ténacité pour reproduire la propagation de fissure instable. **Dans les calculs, l'amorce de plusieurs fissures successives est observée sous le chargement de pression des bulles, qui se propagent de façon instable de bulle en bulle.** La convergence des calculs est possible grâce à un pilotage en déformation des bulles, considérées comme un milieu homogène auquel est appliquée une déformation thermique fictive (correspondant au chargement de pression). Ce comportement est en adéquation avec l'hypothèse de comportement fragile, et l'observation expérimentale, qui relève des bouffées de relâchement de gaz de fission, qui correspondent aux différentes apparitions de fissures. Les simulations permettent d'étudier la rupture selon les modes de fissuration (dépendant du fuseau de bulles) pour un état de chargement de pression dans les bulles correspondant à la température d'essai à l'instant précédent le premier relâchement de gaz de fission. Une évaluation de la température expérimentale en amont du burst crayon permet de considérer les modes de fissuration donnant l'état de fragmentation du matériau au moment où les fragments sont les plus susceptibles d'être relocalisés ou éjectés hors de la gaine au cours de la dépressurisation. **Cette étape a identifié les modes de fissuration, données d'entrées nécessaires au modèle de rupture défini lors de l'étape d'homogénéisation suivante.**

La dernière étape de développement de l'approche micromécanique présente les équations du modèle de rupture, développé sur la base de la méthode NTFA et de la formulation variationnelle de la rupture de Francfort-Marigo. Ce modèle permet de déterminer si le matériau macroscopique est rompu, suivant les modes de fissuration identifiés, en comparant son taux de restitution de l'énergie à une valeur seuil de rupture G_{max} selon un critère de type Griffith. L'expression de cette énergie est fonction de la déformation macroscopique, de la pression dans les bulles. L'identification des trois composantes tensorielles du modèle, dépendantes des modes de fissuration n'a pas été réalisée ici.

A l'avenir, ce modèle pourra être intégré dans un code de simulation du comportement thermo-mécanique du crayon combustible (CYRANO ou ALCYONE-CARACAS par exemple), qui à partir de la déformation macroscopique et de la pression moyenne dans les bulles HBS (variables estimées à chaque point de Gauss et à chaque instant par le code de structure) pourra fournir un champ scalaire indiquant si le matériau est rompu ou non. Ainsi l'instant de rupture et la taille des fragments (via un post-traitement reposant sur le mode de fissuration) pourront être déduits à l'échelle de la zone HBS.

Certains points difficiles et pistes d'améliorations de la méthode peuvent être explorés dans de futurs travaux sur les thèmes suivants :

- **Influence du fuseau considéré sur les modes de rupture.** Une étude à même taux de porosité pourrait être réalisée pour déterminer l'influence précise de la largeur du fuseau (différence entre les plus petites bulles et les plus grandes bulles représentées). Dans nos travaux, les tirages ont été comparés aux fuseaux expérimentaux et à la taille moyenne des bulles numériques mais leur taux de porosité différent ne permet pas une comparaison directe de l'influence du fuseau sur la fissuration.
- **Ajout d'une matrice polycristaline.** Contrairement à notre hypothèse de matrice homogène, la zone HBS est constituée de grains submicroniques. Les bulles HBS sont généralement entourées d'une dizaine de grains (qui leur donne leur forme singulière) dans le matériau. La modélisation des grains avec les propriétés des joints de grains pourraient influencer les modes de rupture, en donnant un chemin de fissure préférentiel, différent des résultats dans la matrice homogène.
- **Présence de gaz dans les bulles HBS.** Dans nos calculs, nous avons considéré un matériau fictif dans les bulles dont les propriétés ont été choisies pour garantir les hypothèses mécaniques correspondant à un chargement de pression hydrostatique. Ce matériau pourrait être remplacé par les propriétés réelles du gaz (majoritairement Xe/Kr), dépendantes de la valeur de la température. Cette hypothèse force à réévaluer les propriétés des bulles à chaque pas de temps, en assurant la convergence des calculs.
- **Ajustement de la déformation thermique fictive dans les bulles à chaque pas de chargement en fonction de la rigidité locale.** Le chargement de déformation des bulles tient compte de la répartition du champ de contraintes dans leur voisinage. Cette valeur est attribuée en début de calcul et est fixée pour tout le calcul. Cependant au fur et à mesure que le matériau s'endommage, le champ de contrainte autour de chaque bulle est modifié avec la perte de la rigidité des éléments rompus ou la dépressurisation des bulles. Le chargement devrait être réévalué à chaque pas de temps afin d'assurer une pression homogène dans toutes les bulles non rompues. Dans notre modèle, ne pas redéfinir le chargement entraîne une surprédiction des pressions après l'amorçage de la première fissure. Cette prise en compte du chargement uniforme à tous les pas de temps est importante dans le cas où l'on souhaiterait comparer les résultats aux essais de recuits thermiques après la première rupture (par exemple, pour évaluer la fragmentation en amont de la rupture de la gaine).
- **Estimation de la taille des fragments.** Elle reste à ce jour difficile. Il faut comparer les résultats obtenus aux essais expérimentaux sur disques d' UO_2 totalement restructurés ou sur pastille de combustible ayant subi un transitoire thermique. Les deux grandeurs comparables sont : i) la taille des fragments et ii) le relâchement de gaz de fission. Pour le premier paramètre, notre VER de côté $9\ \mu\text{m}$ est trop petit pour être comparé directement à la taille des fragments après les mesures de tamisage. Il faudrait pouvoir simuler des volumes plus grands pour valider le critère à l'échelle d'un VER, ce qui est actuellement impossible compte tenu de nos capacités de calcul. Par ailleurs une amélioration des post-traitements comptant les fragments est à envisager. Pour les relâchements de gaz de fission, actuellement les post-traitements considèrent que toutes les fissures créées ont relâché le gaz qu'elles contenaient. Cette hypothèse surévalue les quantités

de gaz relâchés en considérant que toutes les fissures créées sont débouchantes. Une étude plus poussée devrait permettre de prendre en compte uniquement les bulles connectées aux fissures débouchantes sur un bord du VER.

- Il existe un **besoin de nouvelles caractérisations expérimentales permettant de préciser les propriétés du matériau à rupture**. Bien que notre modèle soit basé sur une valeur non physique de la ténacité pour représenter une propagation de fissure instable, nous ne disposons que d'une gamme de valeurs pour la contrainte à rupture. Sans la valeur de la contrainte à rupture, nous avons proposé une méthode de recalage par rapport aux températures et à la pression de premiers relâchements gazeux pour reproduire les essais de recuits. Cette identification de la contrainte à rupture pourrait être validée par des résultats des essais expérimentaux proposés.
- **Validation du critère de rupture réalisée à partir des essais semi intégraux**. Une fois identifié, les résultats de fragmentation et de relâchement pourront être comparés aux essais de transitoires thermiques sur crayon. Néanmoins, la validation de la fragmentation ne sera exploitable que si les fragments issus de la zone restructurée HBS du combustible sont identifiés et comptabilisés séparément du reste des fragments, générés depuis d'autres rayons de la pastille combustible. Cette distinction des fragments est nécessaire pour valider le critère qui ne s'applique qu'à la zone HBS.
- **Réalisation d'un benchmark pour différents taux de porosité / extension à d'autres microstructures**. Il est possible de réaliser cette étude pour différents taux de porosité (représentatifs de plusieurs taux de combustion) et d'identifier le critère sur chacune de ces représentations. Cette étude pourrait permettre l'obtention d'abaques donnant l'état de fragmentation de la zone HBS en fonction de l'irradiation du combustible. Ce critère étant dépendant de la microstructure (taux de porosités et fuseau considéré), il est possible d'envisager d'étendre son utilisation pour évaluer la fragmentation de la zone centrale de la pastille en considérant les bulles intergranulaires. Il suffirait de reprendre la méthode en considérant un VER représentatif de la microstructure centrale de la pastille et de procéder à l'identification du critère de rupture. La validation serait réalisée sur les essais intégraux en distinguant les fragments issus de la partie centrale de la pastille. Dans ce cas, une réflexion du rôle des bulles intragranulaires et des grains sur la fissuration dans la matrice doit être menée.

Ce travail de thèse a permis de réaliser une synthèse des propriétés géométriques et mécaniques de la zone HBS. La mise en place de la procédure de calcul, les modèles et les outils d'analyse pour modéliser la formation de fragments sur une représentation 3D de cette microstructure poreuse donnent des résultats encourageants pour prédire les modes de rupture malgré le manque de validation actuelle du modèle macroscopique. À terme, cette méthode pourrait déterminer une distribution de taille de fragments après un transitoire APRP. Ces résultats serviraient alors de données d'entrées à un code de relocalisation des fragments du crayon combustible après implémentation du critère dans un code de calculs thermomécanique crayon.

Bibliographie

- [21613] NUREG. *Post-Test Examination Results from Integral, High-Burnup, Fueled LOCA Tests at Studsvik Nuclear Laboratory*, 2013.
- [AMM09] H. Amor, J.-J. Marigo, and C. Maurini. Regularized formulation of the variational brittle fracture with unilateral contact : Numerical experiments. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 57 :1209–1229, 2009.
- [AT90] L. Ambrosio and V. Tortorelli. Approximation of functionals depending on jumps by elliptic functional via gamma-convergence. *Communications on Pure and Applied Mathematics*, 43 :99–1036, 1990.
- [Bar] D. Baron. *Notions de Physique nucléaire appliquées au réacteur*. Cours dispensés à l’Ecole centrale de Nantes aux élèves de troisième année.
- [Bar62] G. I. Barenblatt. The mathematical theory of equilibrium cracks in brittle fractures. *Advances In Applied Mechanics*, 7(18,45) :55–129, 1962.
- [BB99] T. Belytschko and T. Black. Elastic crack growth in finite elements with minimal remeshing. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 45(5) :601–620, 1999.
- [BB02] D. Baron and P. Bouffieux. Le crayon combustible des réacteurs à eau pressurisée de grande puissance (tranches 900 et 1300 MWe). Cours de l’école de Centrale Nantes, 2002.
- [BBG⁺01a] M. Bornert, T. Bretheau, P. Gilormini, D. Jeulin, J.-C. Michel, H. Moulinec, P. Suquet, and A. Zaoui. *Mécanique et Ingénierie des Matériaux - Homogénéisation en mécanique des matériaux 1 - Matériaux aléatoires élastiques et milieux périodiques*, chapter Chapitre 1. Changement d’échelle : motivation et méthodologie par A. Zaoui. Hermes Science, 2001.
- [BBG⁺01b] M. Bornert, T. Bretheau, P. Gilormini, D. Jeulin, J.-C. Michel, H. Moulinec, P. Suquet, and A. Zaoui. *Mécanique et Ingénierie des Matériaux - Homogénéisation en mécanique des matériaux 1 - Matériaux aléatoires élastiques et milieux périodiques*, chapter Chapitre 3. Composites à microstructure périodique par J.-C. Michel et H. Moulinec et P. Suquet. Hermes Science, 2001.
- [BBM09] B. Baldelli, B. Bourdin, and C. Marigo, J.-J. Maurini. Fracture and debonding of a thin film on a stiff substrate : analytical and numerical solutions of a one-dimensional variational model. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 57 :1209–1229, 2009.
- [BFJJ00] B. Bourdin, G.-A. Francfort, and Marigo J.-J. Numerical experiments in revisited brittle fracture. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 48 :797–826, 2000.
- [BHP10] T. Børvik, O.-S. Hopperstad, and K.-O. Pedersen. Quasi-brittle fracture during structural impact of aa7075-t651 aluminium plates. *International Journal of Impact Engineering*, 37(5) :537–551, 2010.
- [BHW80] R. Bullough, M.R. Hayns, and M.R. Wood. Sink strengths for thin film surfaces and grain boundaries. *Journal of Nuclear Materials*, 90 :44–59, 1980.

- [BKTL03] D. Baron, M. Kinoshita, P. Thevenin, and R. Largeton. Final report. Technical report, Projet international HBRP 1994-2001, 2003.
- [BKTL09] D. Baron, M. Kinoshita, P. Thevenin, and R. Largeton. Discussion on hbs transformation in high burn-up fuels. *Nuclear Engineering and Technology*, 41,2 :199–214, 2009.
- [BL87] T. Belytschko and J.I. Lin. A three-dimensional impact- penetration algorithm with erosion. *International Journal of Impact Engineering*, 5(1-4) :111–127, 1987.
- [Bla09] V. Blanc. *Modélisation du comportement thermomécanique des combustibles à particules par une approche multi-échelle*. PhD thesis, Université de Provence en Mécanique du Solide, 2009.
- [Bla13] N. Blal. *Modélisation Micromécanique et Identification Inverse de l’Endommagement par Approche Cohésive*. PhD thesis, Université Montpellier 2, 2013.
- [BM07] A. Benallal and J.-J. Marigo. Bifurcation and stability issues in gradient theories with softening. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 1(15) :283–295, 2007.
- [BMMP14] B. Bourdin, J.-J. Marigo, C. Maurini, and Sicsic P. Morphogenesis and propagation of complex cracks induced by thermal shocks. *Physical review letters*, 112(1), 2014.
- [BMP96] H. Bailly, D. Ménessier, and C. Prunier. *Le combustible nucléaire des Réacteurs à Eau sous Pression et des Réacteurs à Neutrons Rapides*. Eyrolles, 1996.
- [BMR⁺07] V. Blanc, B. Michel, J.-M. Ricaud, M. Garajeu, and J.-C. Michel. Modélisation du comportement des combustibles à particules : caractérisation d’un volume Élémentaire représentatif pour un milieu hétérogène aléatoire. In *18ème Congrès Français de Mécanique, Grenoble*, 2007.
- [BO83] Z.P. Bazant and B. Oh. Crack band theory for fracture of concrete. *RILEM Materials and Structures*, 16 :155–177, 1983.
- [Boi13] G. Boittin. Décohésion intergranulaire dans les pastilles et UO_2 dopé Cr. Technical Report Note technique DEC/SESC/LSC 13-02, CEA-DEC, 2013.
- [Bou98] B. Bourdin. *Une méthode variationnelle en mécanique de la rupture, théorie et applications numériques*. PhD thesis, Thèse de doctorat de l’Université Paris 13, 1998.
- [Bou07] B. Bourdin. Numerical implementation of the variational formulation of quasi-static brittle fracture. *Interfaces Free Boundaries*, 9 :411–430, 2007.
- [Bra98] A. Braides. Approximation of free-discontinuity problems. *Lecture Notes in Mathematics*, 1998. Springer, Berlin.
- [BS97] C. Borgnake and R.E. Sontay. *Thermodynamic and Transport properties*. John Wiley and Sons Inc, 1997.
- [BTL⁺08] D. Baron, P. Thevenin, R. Largeton, R. Masson, S. Pujet, and R. Arnaud. CYRANO3 an EDF nuclear fuel performance code designed for engineering applications. In *CANDU fuel : leading the renaissance 10th international conference on CANDU fuel*, page 133, 2008.
- [BZZ⁺14] T. Bo, Y.-L. Zhao, Y.-J. Zhang, C.-H. He, and Z.-H. Chai. First-principles study of water adsorption and dissociation on the UO_2 (1 1 1), (1 1 0) and (1 0 0) surfaces. *Journal of Nuclear Materials*, 454 :446–454, 2014.
- [Cag16] C. Cagna. *Influence des gaz de fission sur l’état mécanique des combustibles oxydes irradiés*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure d’Arts et Métiers, 2016.
- [cas90] CEA, DRN, DMT. *CASTEM 2000, Guide d’utilisation : www-cast3m.cea.fr*, france edition, 1990.

- [cas03] CEA. *Notices Cast3M* : www-cast3m.cea.fr/cast3m/listnotives.do, 2003.
- [CE14] CEA and EDF. MFront. <http://tfel.sourceforge.net/>, 2014.
- [CKMP01] J.-L. Chaboche, S. Kruch, J. Maire, and T. Pottier. Towards a micromechanics based inelastic and damage modeling of composites. *International Journal of Plasticity*, 17 :411–439, 2001.
- [CL96] J.-L. Chaboche and J. Lemaître. *Mécanique des matériaux solides*. Dunod, 2nd édition, 1996.
- [CnS98] P. Castaneda and P. Suquet. *Advances in Applied Mechanics*, volume 34, chapter Nonlinear composites, pages 171–302. In der Giessen, E. V., Wu, T. (Eds), Academic Press, New York, 1998.
- [Cou] Cours de mécanique MINES ParisTech. mms2.ensmp.fr/mms_paris/plasticité3D/exercices.
- [CTP14] P. Chakraborty, M. R. Tonks, and G. Pastore. Modeling the influence of bubble pressure on grain boundary separation and fission gas release. *Journal of Nuclear Materials*, 2014.
- [Del13] R. Delorme. *Comportement du combustible (U,Gd)UO₂ en irradiation : Effet du gadolinium sur l'évolution microstructurale et sur le comportement des gaz de fission*. PhD thesis, Université de Caen Basse Normandie., 2013.
- [Dia01] O. Diard. *Un exemple de couplage, comportement-environnement, dans les polycristaux - Application à l'interaction pastille Gaine*. PhD thesis, ENSMP, Paris, 2001.
- [DL63] D. Davies and G. Long. Aere-r-4347, 1963.
- [DP04] L. Desgranges and B. Pasquet. Measurement of xenon in uranium dioxide (UO₂) with SIMS. *Nuclear Instrument and Methods in Physics Research Section B*, pages 545–551, 2004.
- [Dug60] D. Dugdale. Yielding of steel sheets containing slits. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 8(18) :100–104, 1960.
- [Dvo92] G. Dvorak. Transformation field analysis of inelastic composite materials. *Proceedings of the Royal Society A*, 437 :311–327, 1992.
- [DVP⁺08] L. Desgranges, C. Valot, B. Pasquet, J. Lamontagne, T. Blay, and I. Roure. A method for the quantification of total xenon concentration in irradiated nuclear fuel with SIMS and EPMA. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 266 :147–154, 2008.
- [Eva93] J.-W. Evans. Random and cooperative sequential adsorption. *Reviews of Modern Physics*, 65 :1281–1329, 1993.
- [Fed80] J. Feder. Random sequential adsorption. *Journal of Theoretical Biology*, 87 :237–254, 1980.
- [FM88] G. A. Francfort and J.-J. Marigo. Revisiting brittle fracture as an energy minimization problem. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 46(8) :1319–1342, 1988.
- [FN96] M. Frémond and B. Nedjar. Damage, gradient of damage and principle of virtual power. *International Journal of Solids and Structures*, 8 :33, 1996.
- [For04] S. Forest. *Milieux continus généralisés et matériaux hétéogènes*. PhD thesis, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2004.
- [FS99] J. Fish and K. Shek. Finite deformation plasticity for composite structures : Computational models and adaptive strategies. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 172 :145–174, 1999.
- [GCX⁺13] L. Gao, B. Chen, Z. Xiao, S. JIANG, and J. YU. Pore pressure calculation of the UO₂ high burnup structure. *Nuclear Engineering and Design*, 260 :11–15, 2013.

- [GNS83] P. Germain, Q. S. Nguyen, and P. Suquet. Continuum Thermodynamics. *Journal of Applied Mechanics*, 50 :1010–1020, 1983.
- [GSAM15] J.-M. Gatt, J. Sercombe, I. Aubrun, and J.-C. Ménard. Experimental and numerical study of fracture mechanisms in UO_2 nuclear fuel. *Engineering Failure Analysis*, 47 B :299–311, 2015.
- [Hel15] T. Helfer. Introducing the open-source mfront code generator : application to mechanical behaviours and material knowledgemanagement within the pleiades fuel element modelling platform. *Computers and Mathematics with Applications*, 2015.
- [HFJ86] E.-L. Hinrichsen, J. FEDER, and T. JOSSANG. Geometry of random sequential adsorption. *Journal of Statistical Physics*, 44 :783–827, 1986.
- [HMD87] R.O.A Hall, M.J. Mortimer, and Mortimer D.A. The surface energy measurements on UO_2 . *Journal of Nuclear Materials*, 148 :237–256, 1987.
- [HMP76] M. Hillerborg, M. Modèer, and P.E. Petersson. Analysis of crack formation and crack growth in concrete by means of fracture mechanics and finite elements. *Cement and Concrete Research*, 6(6) :773–781, 1976.
- [HN75] B. Halphen and Q.S. Nguyen. Sur les matériaux standard généralisés. *Journal de Mécanique*, 14 :39–63, 1975.
- [HO83] C. Hindmarsh and A. Odepack. *Systematized Collection of ODE Solvers*. Scientific Computing, R.S., North Hollande, Amsterdam, stepleman and al. edition, 1983.
- [HRA14] M. E. Hoover, A.-F. Raymond, and K. R Asok. Surface properties of uranium dioxide from first principles. *Journal of Nuclear Materials*, 452 :479–485, 2014.
- [J.13] Dealms J. Fonctions de forme et points d’intégration des éléments finis. Technical report, GNU FUEL www.gnu.org/copyleft/fdl.html, 2013.
- [JM06] A. Jaubert and J.-J. Marigo. Justification of paris-type fatigue laws from cohesive forces model via a variational approach. *Continuum Mechanics and Thermodynamics*, 18 :23–45, 2006.
- [JS87] G.R Johnson and R.A. Stryk. “eroding interface and improved tetrahedral element algorithms for high-velocity impact computations in three dimensions. *International Journal of Impact Engineering*, 5(1-4) :411–421, 1987.
- [JSB⁺14] G. Jomard, C. Struzik, A. Boulore, P. Mailhé, V. Auret, and R. Largeton. Caracas : An industrial model for the description of fission gas behavior in LWR- UO_2 fuel. In *WRFP 2014*, volume Sendai, Japan, page Paper 100154, September 14-17th 2014.
- [Kac86] L. Kachanov. *Introduction to continuum damage mechanics*. Number 14 in Martinus Nijhoff. Dordrecht, 1986.
- [Kap61] M.F. Kaplan. Crack nroparration and the fracture of concrete. *A.C.Z. J*, 58(591610), 1961.
- [KLCS01] Y.-H. Koo, B.-H. Lee, J.-S. Cheon, and D.-S. Sohn. Pore pressure and swelling in the rim region of lwr high burnup UO_2 fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 295 :213–220, 2001.
- [KV93] P. Kattan and G. Voyiadjis. Overall damage and elastoplastic deformation in fibrous metal matrix composites. *International Journal of PLasticity*, 9 :931–949, 1993.
- [LA-01] Los Alomos National Laoratory, U.S Nuclear Regulatory Commission. *Phenonmenon Identification and Ranking Tables (PIRTs) for Loss-of-Coolant Accidents in Pressurised and Boiled Water Reactors Containing High Burn-up Fuel*, December 2001.
- [Lar11] R. Largeton. *Modélisation du comportement effectif du combustible MOX*. PhD thesis, Université de Provence, 2011.

- [LB09] F. Lemoine and D. Baron. Structures haut taux de combustion dans les combustibles oxides : observations expérimentales et mécanismes de formation. Technical Report SESC/LIPA 09-013 (DR) Ind. 0, CEA, décembre 2009.
- [LBM10] F. Lemoine, D. Baron, and P. Martin. Key parameters for the hbs formation thresholds in oxide fuels. In *Proceeding of 2010 LWR Fuel Performance*, page 062. TopFuel/WRFPM Orlando USA, 2010.
- [LC94] J. Lemaitre and J.-L. Chaboche. *Mechanics of Solid Materials*. Cambridge University Press, 1994.
- [Lem85] J. Lemaitre. A continuous damage mechanics model for ductile fracture. *Journal of Engineering Materials and Technology*, 107 :83–89, 1985.
- [Lev13] J. Levêque. *Le combustible nucléaire (passé, présent et avenir)*. CEA, formation de l'école du combustible edition, 2013.
- [Liu07] W. Liu. *Assessment of high-burnup LWR fuel response to reactivity-initiated accidents*. PhD thesis, Massachusetts Institute of Technology, 2007.
- [LMS14] R. Largeton, J.-C. Michel, and P. Suquet. Extension of the nonuniform transformation field analysis to linear viscoelastic composites in the presence of aging and swelling. *Mechanics of Materials*, 73 :76–100, 2014.
- [LMWW16] S. Lee, A. Mikelic, M. F. Wheeler, and T. Wick. Phase-field modeling of proppant-filled fractures in a poroelastic medium. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 312 :509–541, 2016.
- [LOC15] LOCA Workshop. *Radial origin of fragments formed during a fast 1200 °C heating test of a 83 MWd/kgU UO₂ fuel*, Aix en Provence, May 2015. Noiro, J. and Blay, Th. and Pujol, X. Lamontagne, J. and Fayette, L.
- [Lor08] E. Lorentz. A mixed interface finite element for cohesive zone models. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.* 198, 198 :302–317, 2008.
- [Los00] P. Losonen. On the behaviour of intragranular fission gas in UO₂ fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 280 :56–72, 2000.
- [LRC09] G. Lancioni and G. Royer-Carfagni. The variational approach to fracture mechanics. a practical application to the French Panthéon in Paris. *Journal of Elasticity*, 95(8) :1–30, 2009.
- [LS07] N. Lahellec and P. Suquet. On the effective behavior of nonlinear inelastic composites : Part I. incremental variational principles. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 55(9) :1932–1963, 2007.
- [Mat67] G. Matheron. *Éléments pour une théorie des milieux poreux*. Masson et Cie, 1967.
- [Maz86] J. Mazars. A description of micro and macroscale damage of concrete structures. *Engineering Fracture Mechanics*, 25 :729–737, (1986).
- [MB02] N. Moës and T. Belytschko. Extended finite element method for cohesive crack growth. *Engineering Fracture Mechanics*, 69(7) :813–833, 2002.
- [MC88] E. Muller-Casanova. *Comportement des gaz de fission dans un combustible irradié lors d'un transitoire de puissance*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille, 1988.
- [MDB99] N. Moës, J. Dolbow, and T. Belytschko. A finite element method for crack growth without remeshing. *International Journal for Numerical Methods Engineering*, 46 :131–150, 1999.
- [MGS⁺14] V. Marelle, P. Golbrow, J. Sercombe, G. Jomard, B. Michel, and J. Julien. Main features of the thermo-mechanical fuel code alcyone 1.4. In *NuMath 2014*, volume Clearwater Beach, Florida, October 2014.

- [MHRE16] B. Michel, T. Helfer, I. Ramiere, and C. Esnoul. 3d continuum damage approach for simulation of crack initiation and growth in ceramic materials. *Advances in Fracture and Damage Mechanics*, XV(713) :155–158, 2016.
- [MHW10] C. Miehe, M. Hofacker, and F. Welschinger. A phase field model for rate-independent crack propagation : Robust algorithmic implementation based on operator splits. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 199(45) :2765–2778, 2010.
- [Mia86] P. Mialon. Éléments d’analyse et de résolution numérique des relations de l’élasto-plasticité. *EDF, Bulletin de la Direction des Etudes et Recherches, Mathématiques, Informatique*, 1986.
- [Mie02] C. Miehe. Strain-driven homogenization of inelastic micro-structures and composites based on an incremental variational formulation. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 55 :1285–1322, 2002.
- [MIW80] Hj. Matzke, T. Inoue, and RA Warren. The surface energy of UO_2 as determined by Hertzian indentation. *Journal of Nuclear Materials*, 91 :205–220, 1980.
- [MM97] Hj. Matzke and Kinoshita M. Polygonization and high burnup structure in nuclear fuels. *Journal of Nuclear Materials*, 247 :108–115, 1997.
- [MM16] C. Miehe and S. Mauthe. Phase field modeling of fracture in multi-physics problems. part iii. crack driving forces in hydro-poro-elasticity and hydraulic fracturing of fluid-saturated porous media. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 304 :619–655, 2016.
- [Mon00] Y. Monerie. *Fissuration des matériaux composites : rôle de l’interface fibre/matrice*. PhD thesis, Université d’Aix-Marseille 2, 2000. 99.
- [MPC96] J. Mazars and G. Pijaudier-Cabot. From damage to fracture mechanics and consersely : a combined approach. *Solids Structures*, 33(20-22) :3327–3342, 1996.
- [MS98] D. B. Mumford and J. Shah. Optimal approximations by piecewise smooth functions and associated variational problems. *Communications on Pure and Applied Mathematics*, 42(5) :577–685, 1998.
- [MS03] J.-C. Michel and P. Suquet. Nonuniform Transformation Field Analysis. *International Journal of Solids and Structures*, 40 :6937, 6955 2003.
- [MS04] J.-C. Michel and P. Suquet. Computational analysis of nonlinear composite structures using the Nonuniform Transformation Field Analysis. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 193 :5477–5477, 2004.
- [MS09] J.-C. Michel and P Suquet. *Multiscale Modelling in Solid Mechanics – Computational Approaches*, chapter Nonuniform Transformation Field Analysis : a reduced model for multiscale nonlinear problems in Solid Mechanics, pages 159–206. Imperial College Press, pp. In Aliabadi, F., Galvanetto, U. (Eds.), 2009. chapter 4.
- [MS16] J.-C. Michel and P Suquet. A model-reduction approach in micromechanics of materials preserving the variational structure of constitutive relations. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, pages 254–285, 2016.
- [MSTC08] B. Michel, J. Sercombe, G. Thouvenin, and R. Chatelet. 3d fuel cracking modelling in pellet cladding mechanical interaction. *Engineering Fracture Mechanics*, 75 :3581–3598, 2008.
- [MWH10] C. Miehe, F. Welschinger, and M. Hofacker. A phase field model for rate-independent crack propagation : Ro. *Internation Journal For Numerical Methods In Engineering*, 83 :1273–1311, 2010.

- [NDL⁺04] J. Noirot, L. Desgranges, J. Lamontagne, T. Blay, B. Pasquet, and B. Muller. Fission gas inventory in pwr high burnup fuel : Experimental characterization and modeling. In *Proceeding of the International topical meeting on LWR fuel performance*, Florida Orlando, 2004.
- [NDL08] J. Noirot, L. Desgranges, and J. Lamontagne. Detailed characterisations of high burn-up structures in oxide fuels. *Journal of Nuclear Materials*, 372 :318–339, 2008.
- [Nee88] A. Needleman. Material rate dependence and mesh sensitivity in localization problems : A computer methods. *Applied Mechanics and Engineering*, 67(1) :69–85, 1988.
- [Neg03] M. Negri. A finite element approximation of the griffith’s model in fracture mechanics. *Numerische Mathematik*, 95(4) :653–687, 2003.
- [NFI11] NFIR. Final report part2. Technical report, NFIR, 2011.
- [NHU99] K. Nogita, K. Hayashi, and K. Une. Depth profiles of dmages accumulation in UO_2 and $(U,Gd)O_2$ pellets irradiated with 100MeV iodine ions. *Journal of Nuclear Materials*, 273 :179–190, 1999.
- [Noi05] L. Noirot. MARGARET - description physique et numérique du modèle de de gaz applicable a chaque milieu homogène d’un combustible UO_2 ou MOX. Technical report, CEA, mai 2005. NT SESC/LSC 04-040.
- [Noi06] J. Noirot. Petit outil simple de passage 2d/3d. Technical Report 021, CEA, 2006. NT SA3C/L2EC.
- [Noi11] L. Noirot. MARGARET : A comprehensive code for the description of fission gas behavior. *Nuclear engineering*, 241(6) :2099–2118, 2011.
- [NPY⁺06] J. Noirot, Y. Pontillon, S. Yagnik, J. A. Turnbull, and T. Tverberg. Fission gas release behavior of a 103 GWd/tHM fuel disc during a 1200 °C annealing test. *Journal of Nuclear Materials*, 446 (1-3) :163–171, 2006.
- [NT16] J. Noirot and J.A. Turnbull. Mexiico test results. Technical report, EPRI, 2016.
- [NU94] K. Nogita and K. Une. Radiation induced microstructural change in high burnup UO_2 fuel pellets. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 91(1-4) :301–306, 1994.
- [NU95] K. Nogita and K. Une. Irradiation-induced recrystallization in high burnup UO_2 fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 226 :302–310, 1995.
- [NU98] K. Nogita and K. Une. High resolution TEM observation and density estimation of xe bubbles in high burnup UO_2 fuels. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Materials and Atoms*, 141(1) :481–486, 1998.
- [NYZ⁺15] T.T. Nguyen, J. Yvonnet, Q.-Z. Zhu, M. Bornert, and C. Chateau. A phase field method to simulate crack nucleation and propagation in strongly heterogeneous materials from direct imaging of their microstructure. *Engineering Fracture Mechanics*, 139 :18–39, 2015.
- [OEC09] Secretary General OECD. Nea no. 6846, 2009.
- [Ola76] Donald R Olander. Fundamental aspects of nuclear reactor fuel elements, 1976.
- [OS99] M. Ortiz and L. Stainier. The variational formulation of viscoplastic constitutive updates. *Comouter Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 171 :419–444, 1999.
- [PB08] D. Parrat and C. Brachet. *Les combustibles nucléaires, e-den.* CEA, www.materials.cea.fr/PDF/MonographiesDEN/Lescombustiblesnucleaires_CEA-fr.pdf, 2008.
- [PCB87] G. Pijaudier-Cabot and Z.P. Bazant. Nonlocal damage theory. *Journal of Engineering. Mechanic*, 113(10) :1512–1533, 1987.

- [PCC⁺15] Y. Pontillon, H. Capdevila, S. Clement, E. Guigues, A. Janulyte, Y. Zerega, and J. Andre. Increasing of MERARG experimental performances : in-line fission gas release measurement by mass spectrometry. In *ANIMMA 2015*, Lisbon, Portugal, July 2015.
- [PCN91] P. Ponte Casta-Neda. The effective mechanical properties of nonlinear isotropic composites. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 39(45-71), 1991.
- [PCN96] P. Ponte Casta-Neda. Exact second-order estimates for the effective mechanical properties of nonlinear composite materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 44 :827–862, 1996.
- [PCZ87] G. Pijaudier-Cabot and Bazant. Z. Nonlocal damage theory. *Journal of Engineering Mechanics*, 113(10) :1512–1533, 1987.
- [PFPP04] Y. Pontillon, M.-P. Ferroud-Plattet, and D. Parrat. Experimental and theoretical investigation of fission gas release from UO_2 up to 70 GWd/tM under simulated LOCA-type conditions : The GASPARD programme. In *International Meeting on LWR Performance*, 2004.
- [PFPR03] Y. Pontillon, M.-P. Ferroud-Plattet, and S. Ravel. Compte-rendu d'essais et d'interprétation de la campagne GASPARD A8 (UO_2 ALIX 6 cycles). Technical report, CEA, mars 2003.
- [PL00] P. Papon and J. Leblond. *Thermodynamique des états de la matière*. HERMANN, 2000.
- [PM10a] K. Pham and J.-J. Marigo. The variational approach to damage : I. the foundations. *Comptes Rendus Mécanique*, 338(4) :191–198, 2010.
- [PM10b] K. Pham and J.-J. Marigo. The variational approach to damage : II. the gradient damage models. *Comptes Rendus Mécanique*, 338(4) :199–206, 2010.
- [PO12] A. Pandolfi and M. Ortiz. An eigenerosion approach to brittle fracture. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 92(8) :694–714, 2012.
- [Rab12] T. Rabczuk. Computational methods for fracture in brittle and quasi-brittle solids : State-of-the-art review and future perspectives. *ISRN Applied Mathematics*, 2013, 2012.
- [Ras] B. Rasser. *Projet IMS6f blindé : détermination des quantités de matière pulvérisée*.
- [RDP03] B. Rasser, L. Desgranges, and B. Pasquet. A new shielded SIMS instrument for analysis of highly radioactive materials. *Appl. Surf. Sci*, 203-204 :673–678, 2003.
- [Rep10] CSNI Report. Safety significance of the Halden IFA-650 LOCA test results. Technical report, NEA/CSNI/R, 2010.
- [RMS09] S. Roussette, J.-C. Michel, and P. Suquet. Nonuniform transformation field analysis of elastic-viscoplastic composites. *Composites Science and Technology*, 69 :22–27, 2009.
- [RT97] M.-D. Rintoul and S. Torquato. Reconstruction of the structure of dispersions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 186 :467–476, 1997.
- [sal18] Open Cascade. *Outil SALOME : salome-platform.org*, 2005-2018.
- [SB75] M.V. Speight and W. Beere. Vacancy potential and void growth on grain boundaries. *Metal Science* 9, pages 190–191, 1975.
- [SCSR03] J. Spino, J. Cobos-Sabate, and F. Rousseau. Room temperature microindentation behaviour of lwr-fuels, part 1 : fuel microhardness. *Journal of nuclear materials*, 322 :204–216, 2003.
- [SER⁺06] F. Skomurski, R. Ewing, A. Rohl, J. Gale, and U. Beker. Quantum mechanical vs. empirical potential modeling of uranium dioxide (UO_2) surfaces : (111), (110), and (100). *American Mineralogist*, 91 :1761, 2006.

- [SFO08] B. Schmidt, F. Fraternali, and M. Ortiz. Eigenfracture : an eigendeformation approach to variational fracture. *SIAM Multiscale Modeling and Simulation*, 7(3) :1237–1266, 2008.
- [SKR⁺02] T. Sonoda, M. Kinoshita, I. L. F. Ray, T. Wiss, H. Thiele, D. Pellottiero, and V. V. Rondinella. Transmission electron microscopy observation on irradiation-induced microstructural evolution in high burn-up UO_2 disk fuel. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, pages 622–628, 2002.
- [SL06] J. Segurago and J. Llorca. Computational micromechanics of composites : the effect of particle spatial distribution. *Mechanics of Materials*, 38 :873–883, 2006.
- [SMM14] P. Sicsic, J.-J. Marigo, and C. Maurini. Initiation of a periodic array of cracks in the thermal shock problem : a gradient damage modeling. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 63 :256–284, 2014.
- [SO06] Bourgeois S. and Debordes O. *Comportement mécanique des tissés*, chapter 4 : Homogénéisation périodique. Hermes, 2006.
- [Soa72] G. Soave. Equilibrium constants from a modified redkh-kwong equation of state. *Chemical Engineering*, 27 :1197–1203, 1972.
- [SSSCB06] J. Spino, A.D. Stalios, H. Santa Cruz, and D. Baron. Stereological evolution of the rim structure in pwr-fuels at prolonged irradiation : Dependencies with burn-up and temperature. *Journal of nuclear materials*, 354(1-3) :66–84, 2006.
- [Suq87] P. Suquet. *Homogenization Techniques for Composite Media*, volume 272 of *Lecture Notes in Physics*, chapter Elements of Homogenization for Inelastic Solid Mechanics. j, in sanchez-palencia, e., zaoui, a. (eds) edition, 1987.
- [SVC96] J. Spino, K. Vennix, and M. Coquerelle. Detailed characterisation of the rim microstructure in PWR fuels in the burn-up range 40–67 GWd/tM. *Journal of Nuclear Materials*, 231(3) :179–190, 1996.
- [SWB08] H. Song, H. Wang, and T. Belytschko. A comparative study on finite element methods for dynamic fracture. *Computational Mechanics*, 42(2) :239–250, 2008.
- [TBC98] L. E. Thomas, C. E. Beyer, and L. A. Charlot. Microstructural analysis of lwr spent fuels at high burnup. *Journal of Nuclear Materials*, 188 :80–89, 1998.
- [TFF⁺82] J.A. Turnbull, C.A Friskney, J.R. Findlay, F.A. JOHNSON, and A.J. WALTER. The diffusion coefficients of gaseous and volatile species during the irradiation of uranium dioxide. *Journal of Nuclear Materials*, 107 :168–184, 1982.
- [TH92] V. Tvergaard and J. Hutchinson. The relation between crack growth resistance and fracture process parameters in elastic–plastic solids. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 40 (6)(19) :1377–1397, 1992. 26.
- [Tho91] L.E Thomas. *Condensed-phase xenon and krypton in UO_2* , *Fundamental Aspects of Inert Gases in Solids*. S. E. Donnelly, J. H. Evans, New York : Plenum Press, 1991.
- [Top13] TopFuel 2013. *Fuel Fragmentation, Relocation and Dispersal under LOCA Conditions : Experimental Observations*, Charlotte, North Carolina, September 2013.
- [Tor02] S. Torquato. Random heterogeneous materials - microstructure and macroscopic properties. *Springer*, 2002.
- [TWW88] J.A Turnbull, R.J. White, and C. Wise. The diffusion coefficient for fission gas atoms in uranium dioxide. In *Proceedings of the Conf. on Water Reactor Fuel Element Computer Modelling in Steady State*, volume Transient and Accident Conditions, page 174 – 181, Preston, UK, 18–22 Sept. 1988.

- [UHN⁺00] K. Une, M. Hirai, K. Nogita, T. Hosokawa, Y. Suzawa, S. Shimizu, and Y Etoh. Rim structure formation and high burnup fuel behavior of large-grained UO_2 fuels. *Journal of Nuclear Materials*, 278(1) :54–63, 2000.
- [UKH06] K. Une, S. Kashibe, and K. Hayashi. Fission gas release behaviour in high burn-up UO_2 fuels with developed rim structure. *Journal of Nuclear Science and Technolgy*, 43-9 :1161–1171, 2006.
- [UNKI92] K. Une, K. Nogita, S. Kashibe, and M. Imamura. Microstructural change and its influence on fission gas release in high burnup UO_2 fuel. *Journal of Nuclear Materials*, 188 :65–72, 1992.
- [Val99] S. Valin. *Etude des mécanismes microstructuraux liés au relâchement des gaz de fission du dioxyde d’uranium irradié*. PhD thesis, Institut national polytechnique de Grenoble, 1999.
- [VDPR07] C. Valot, L. Desgranges, B. Pasquet, and I. Roure. Analyse quantitative du xénon au SIMS. estimation des pressions en xénon par analyse couplée SIMS-MEB analyse d’images. Technical report, NT SA3C/L2EC 2007-029, 2007.
- [WBP⁺09] C.T Walker, S. Bremier, S. Portier, R. Hasnaoui, and W. Goll. SIMS analysis of an UO_2 fuel irradiated at low temperature to 65 MWd/kgM. *Journal of Nuclear Materials*, 393 :212–223, 2009.
- [Wid66] B. Widom. Random sequential addition of hard spheres to a volume. *The Journal of Chemical Physics*, 44 :3888–3894, 1966.
- [Wil89] J. Willis. The structure of overall constitutive relations for a class of nonlinear composites. *IMA Journal of Applied Mathematics*, 43, 1989.
- [WMM79] M.H. Wood, J.R. Mathews, and H.R. Mathews. Comparison of experiment and nefig calculations of fission gaz behaviour. *Journal of Nuclear Materials*, 87 :167–174, 1979.
- [YB16] K. Yoshioka and B. Bourdin. A variational hydraulic fracturing model coupled to a reservoir simulator. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 88 :137–150, 2016.

Table des figures

1.1	Schéma du fonctionnement d'un réacteur à eau pressurisée	8
1.2	Un assemblage combustible REP. Schéma, vue de dessus et de dessous [BB02]	9
1.3	Représentation d'un crayon combustible utilisé dans un REP 900 MWe. [BB02]	9
1.4	Pastille UO_2 combustible et ses dimensions caractéristiques utilisées en REP.	10
1.5	Vue au MEB de la surface d'un échantillon d' UO_2 laissant apparaitre les grains polyédriques. Les parties noires sont les porosités de fabrication et les bulles situées dans les grains (intragranulaires) ou aux joints de grains (intergranulaires).	10
1.6	Profil radial de température dans la pastille combustible.	11
1.7	Céramographie d'une pastille REP fissurée par le gradient thermique, après un cycle d'irradiation - plan transversal de la pastille.	12
1.8	Déformations thermiques et mise en diabolo de la pastille [BMP96],[Dia01].	13
1.9	Représentation schématique du contact pastille gaine. a) A gauche, une coupe longitudinale (Rz). b) A droite, une coupe transversale ($R\theta$).	13
1.10	Évolution de la température en peau externe de gaine au cours du temps lors d'un transitoire thermique APRP [Lev13].	15
1.11	Aspect de crayons expérimentaux vus en coupe suite à une séquence APRP (essais allemands FR2) [PB08]	16
1.12	Deux conséquences industrielles majeures d'un transitoire APRP : à gauche le ballonnement-éclatement de la gaine. A droite, la surfragmentation du combustible UO_2 - examen après vidange d'un crayon d'un essai réalisé à Studsvik.	17
1.13	Comparaison des microstructures de l' UO_2 . A gauche, le combustible restructuré HBS avec présence de bulles HBS en noir aux JDG, en comparaison à droite au matériau original non restructuré.	18
1.14	Évolution de la concentration en Pu et Nd en fonction de la position radiale dans la pastille pour différents combustible UO_2 [LBM10]	19
1.15	Evolution de la structure du combustible suivant son taux de combustion et sa température. Apparition d'une restructuration HBS (cadre rouge).[SKR ⁺ 02]	19
1.16	Mesures de l'épaisseur de la zone restructurée HBS en périphérie de pastille pour le combustible UO_2 lors de différentes conditions d'irradiation [Del13].	20
1.17	a) A gauche, évolution de la porosité en fonction de la position radiale dans la pastille. b) A droite, image MEB d'un pore de fabrication observé dans la zone HBS pour un combustible UO_2 irradié à 62 GWj/tM [NDL08].	20
1.18	Porosité en fonction de la position radiale, pour des combustibles UO_2 à différents taux de combustion [SVC96].	21
1.19	a) en haut, augmentation de la porosité dans la zone de restructuration. b) en bas, densité et rayon moyen des pores en fonction du taux de combustion local pour un combustible UO_2 [SVC96].	21

1.20 a) à gauche, mesures de Xe par EPMA dans des pastilles d'UO ₂ en fonction du taux de combustion. b) à droite, comparaison entre les mesures de Xe relevées au SIMS (total) et les calculs de création de Xe dans une pastille d'UO ₂ irradiée à fort taux de combustion [NDL08].	22
1.21 Relation entre le rayon et la pression dans les bulles [UKH06]/	23
1.22 Examens MEB de deux fractographies montrant l'évolution radiale de la microstructure HBS en périphérie d'un combustible irradié 6 cycles (72.8 GWj/tM crayon). A gauche le combustible est complètement restructuré HBS (130GW j/tM localement) [BKTL09]. A droite, le combustible est en cours de restructuration HBS.	24
1.23 Distribution de la taille des grains dans le combustible en fonction du taux de combustion moyen pastille et du taux de combustion local au sein de la zone HBS [SVC96].	24
2.1 Echelles d'analyses [BBG ⁺ 01a]	28
2.2 Milieu périodique [BBG ⁺ 01b].	31
2.3 Principe des modèles de zones cohésives [Rab12]	33
2.4 Représentation schématique des trois parties d'un modèle de zones cohésives (en mode d'ouverture de fissure).	35
3.1 Discrétisation axiale en tranche du crayon dans une représentation 1D d'ALCYONE, incluant la pastille, la gaine et le jeu.	45
3.2 Discrétisation radiale 1D sous ALCYONE.	46
3.3 Représentation d'un grain non restructuré dans CARACAS (représentation par une sphère équivalente).	47
3.4 a. Modélisation des états en restructuration et b. restructuré dans CARACAS [JSB ⁺ 14] (Dans CARACAS, les pores intragranulaires ne sont pas représentés et les gaz dissous sont uniquement localisés en intragranulaire).	47
3.5 Transition entre les régimes thermiques et athermiques dans le traitement des dislocations pour le combustible UO ₂ [JSB ⁺ 14]	50
3.6 Évolution de la fraction volumique de combustible restructuré dans le combustible UO ₂ Comparaison calculs expériences.	50
3.7 Procédure d'initialisation des variables caractéristiques de la zone restructurée. Les valeurs de MARGARET sont données par [Noi05] et [Noi11]	52
3.8 Exemple de maillage intermédiaire.	56
3.9 Évolution de la puissance linéique du crayon lors de l'irradiation de base, avant le tir du transitoire de température de type APRP.	58
3.10 Évolution de la température moyenne crayon et de la pression interne crayon lors d'un transitoire thermique de type APRP.	60
3.11 Évolution du rayon moyen, de la fraction volumique moyenne et de la pression interne moyenne des bulles HBS pour le transitoire thermique de type APRP simulé par ALCYONE- CARACAS, pour le temps suivants : t=0 s (temps correspondant au retour à froid à 20 °C après l'irradiation de base), t= 1160 s (temps correspondant avant l'instant de rupture de la gaine lors du transitoire de type APRP) et t= 1250 s (temps correspondant à la température maximale lors du transitoire de type APRP).	61
3.12 Cartographies MEB de deux zones HBS de l'UO ₂ standard, irradié à fort taux de combustion. Zones HBS sur pastille irradiée en réacteur expérimental à gauche et zone HBS irradié en réacteur expérimental à droite. Les points noirs représentent les bulles et les pores HBS.	62
3.13 Fuseau diamétral des bulles HBS sur du combustible UO ₂ irradié à fort taux de combustion en REP EDF.	63

3.14 Exemple de crayon, (rod 2 irradié à 70 GWj/tM et à 700 °C) constitué de disques, irradié dans le réacteur expérimental Halden.	64
3.15 Profil de température radial dans le disque estimé lors du prédimensionnement du crayon expérimental	64
3.16 Comparaison des distributions de taille de porosités HBS selon l'historique d'irradiation et les conditions d'irradiation. Histogramme bleu = zone HBS d'une pastille irradié en REP EDF à un taux de combustion local 90GWj/tM. Histogramme rouge d'un disque entièrement restructuré irradié en réacteur expérimental Halden à un taux de combustion de 103GWj/tM	65
3.17 Description méthode « monobulle »[Cag16]	69
3.18 Comparaisons des valeurs de pressions en fonction du rayon des bulles. Données de la littérature et résultats expérimentaux « monobulle » et méthodes globales sur les combustibles rampés et irradiés à fort taux de combustion en fonctionnement normal.	70
3.19 Module de tirage effectuant la représentation géométrique périodique en 3D de la zone HBS.	74
3.20 Fuseau écrêté, en diamètre de bulles équivalentes, sur la répartition de bulles des pastilles irradiées en crayon	75
3.21 Covariance du VER pastille monodisperse - 8 tailles caractéristiques de VER (L) testées	79
3.22 Covariance du VER pastille polydisperse - 8 tailles caractéristiques de VER (L) testées	79
3.23 Covariance du VER disque polydisperse - 4 tailles caractéristiques de VER (L) testées	79
3.24 Exemple de VER pour les trois microstructures représentant la zone HBS d'un combustible UO ₂ - Longueur caractéristique de 9 μm.	81
3.25 Covariance sur 20 tirages 9 μm du VER pastille polydisperse. Dimensions caractéristiques L = 9 μm.	82
4.1 Procédure de maillage utilisant les outils de l'équipe SALOME	86
4.2 faces périodiques d'un fuseau pastille polydisperse.	87
4.3 Problème de la sphère sous pression interne [Cou]	89
4.4 Exemple de tétraèdres 4 et 10 noeuds avec fonction de formes et fonction d'intégration à 1 et 4 points (linéaire et quadratique)[J.13].	90
4.5 Comparaisons de la contrainte principale max dans la matrice à la surface d'une bulle creuse, pressurisée à 300 MPa. Calculs éléments finis réalisés avec des éléments linéaires à gauche et quadratiques à droite.	91
4.6 Contrainte principale max dans la matrice à la surface de la bulle (pressurisée à 300 MPa) en fonction de la distance au centre de la bulle jusqu'aux bords du VER (cubique de l'arête 0,5 μm). A gauche calcul réalisé à partir d'éléments linéaires et à droite à partir d'éléments quadratiques.	91
4.7 Maillages des quatre raffinements testés pour le VER polydisperse simplifié 9 μm.	92
4.8 Fonction de répartition de la contrainte exprimée en fraction volumique des éléments, sur le VER polydisperse pastille. Les résultats sont donnés pour quatre tailles de maille (r = 0,4 μm).	93
4.9 Maillage de référence des VER pour les trois fuseaux de bulles HBS - 9 μm.	94
4.10 Tracés du niveau de contraintes (en MPa) atteint dans les points de Gauss sur vingt tirages polydisperse pastille 9 μm, chargement 200 MPa	95
4.11 Contrainte principale max (en bleu) ordonnée par ordre croissant selon le tirage et la contrainte moyenne (en orange) dans la matrice sur les vingt tirages d'un fuseau polydisperse pastille, pour 200 MPa de pression dans les bulles.	96
4.12 Histogramme des fréquences cumulées décroissant de la valeur de contrainte principale max dans la matrice sur 20 tirages (fuseau polydisperse pastille).	98

4.13	Valeur moyenne des contraintes sur la couche supérieure d'éléments entourant les bulles dans le tirage 7, pour un chargement de pression de 200 MPa. La bulle où les contraintes sont le plus élevées est considérée comme le site d'amorçage le plus favorable.	99
4.14	Visualisation des sites préférentiels d'amorçage sur le tirage 7	99
5.1	Représentation des différentes phases de chargement du modèle DDIF2 représenté par une loi triangle linéaire avec seuil d'endommagement.	102
5.2	Représentation schématique des gaz de fission précipités aux joints de grains ou présents sous formes de bulles intergranulaires après restructuration HBS du combustible.	107
5.3	Géométrie réelle, facettée d'une bulle HBS et représentation schématique en orange de la bulle HBS avec une singularité d'angle moyen α	108
5.4	Schéma de la forme des deux bulles étudiées pour le calcul G_{theta} : à gauche bulle facettée représentant la bulle HBS. A droite, la bulle sphérique du modèle numérique. Un défaut de longueur a est positionné pour favoriser l'amorçage de fissure.	108
5.5	Maillages des modèles de bulles considérées avec amorce.	109
5.6	Taux de restitution de l'énergie donné par la méthode G_{theta} pour un bulle sphérique ou facettée comportant une singularité, selon application de la pression sur les lèvres de la fissure ou non.	109
5.7	Comparaison de la contrainte principale max dans la matrice pour un chargement de 100 MPa, obtenu selon deux méthodes de chargement. A gauche, calcul avec un pilotage en pression. Au centre, calcul avec un pilotage en déformation. A droite est représentée la différence entre les deux pilotages.	114
5.8	Description de l'algorithme de la convergence forcée utilisé pour les calculs de fissuration [MHRE16].	114
5.9	Évolution de la pression moyenne dans les bulles selon l'incrément de déformation, pour les trois microstructures HBS choisies.	116
5.10	Représentation des modes d'endommagement pour les trois VER : à gauche monodisperse pastille, au milieu polydisperse pastille, à droite polydisperse disque. Les modes sont identifiés à l'instant de la première fissure.	117
5.11	Formation des fragments suivant les modes de fissuration pour les trois microstructures : à gauche, VER sain, au centre, premier mode de fissuration identifié, à droite, fragmentation maximale obtenue dans le cas de notre simulation.	118
5.12	Identification des fragments sur le fuseau polydisperse disque pour le premier mode de fissuration identifiés.	120
5.13	Détail de la correction de la pression moyenne dans les bulles sur le fuseau pastille polydisperse	122
5.14	Pression moyenne dans les bulles pour les tirages 7, 6 et 9 d'un fuseau disque polydisperse.	123
5.15	Formation de fragments sur trois tirages du fuseau pastille polydisperse. A gauche, état initial sain du VER. Au centre, état du VER à l'instant du premier mode de fissuration. A droite, état du combustible en fin d'essai.	124
5.16	Premier mode de fissuration pour les trois tirages (7 - 6 - 9)	125
5.17	Méthode de recalage sur la pression pour trouver la contrainte à rupture σ_M	126
5.18	Valeurs de la pression moyenne d'amorçage de fissure en fonction de la contrainte à rupture, donnée d'entrée du calcul.	126
5.19	Estimation des RGF et de la pression moyenne dans les bulles sur un VER polydisperse disque.	127
A.1	Schéma du fonctionnement du SIMS émissions des électrons et rayon X [RDP03]. . . .	160
A.2	Profil radial de la concentration en xénon mesuré à la microsonde sur combustible UO ₂	161

A.3	Radiation pouvant être émises lors de l'interaction entre le faisceau d'électrons et l'échantillon.	162
D.1	Raffinement des bulles du fuseau monodisperse pour l'étude de la convergence au maillage.	169
D.2	Fraction volumique des éléments fonction de leur contrainte principale max.	170
E.1	Vingt réalisations du VER pastille polydisperse de $9\mu\text{m}$, pour 147 bulles	171
E.2	Vingt réalisations du VER pastille polydisperse de $9\mu\text{m}$, pour 147 bulles	172
E.3	Vingts réalisations du VER pastille polydisperse de $9\mu\text{m}$, 147 bulles.	173
F.1	Loi DDIF2 : différentes phases de chargement/déchargement prise en compte.	175

Liste des tableaux

3.3	Résultats ALCYONE-CARACAS pour la zone HBS de la tranche 5 à l'instant précédent la rupture de la gaine, à $t=1160$ s.	59
3.4	Estimations des pressions pour les bulles HBS données par CARACAS, en fin d'irradiation de base 72GWj/tM, et lors de la rupture de gaine pour un transitoire thermique à $5^{\circ}\text{C}/\text{sec}$	71
3.5	Tableau récapitulatif des calculs de pression des bulles de gaz de fission de la zone HBS et mécanismes associés [Lev13].	71
4.1	Paramétrage des propriétés matériaux et pilotage commun aux calculs élastiques pour les études de convergence.	88
4.2	Caractéristiques du maillage pour l'étude de la bulle unique dans un volume cubique.	90
4.3	Caractéristiques et résultats en contraintes sur les maillages du fuseau polydisperse pastille	93
4.4	Caractéristiques des VERs utilisées pour les caculs élastiques pour les trois microstructures.	94
4.5	Résultats des calculs élastiques sur vingt tirages du fuseau pastille polydisperse.	96
4.6	Contraintes dépassées par au moins 1 % des éléments dans chaque tirage; correspondant aux éléments les plus sollicités donc les plus à même d'amorcer une fissure.	98
5.1	Propriétés élastiques du matériau fictif des bulles	112
5.2	Propriétés communes aux calculs non linéaires pour l'étude de fragmentation.	115
5.3	Propriétés des maillages (éléments linéaires) selon le fuseau de la microstructure HBS.	115
5.4	Résultats de fissuration sur les trois VERs	119
5.5	Comparaison des résultats de fragmentation obtenus sur trois tirages du fuseau disque polydisperse	123
D.1	Caractéristiques des maillages et contraintes principales obtenues pour un chargement dans les bulles de 200 MPa, pour le fuseau pastille monodisperse ($9\ \mu\text{m}$).	170
E.1	Propriétés géométriques du VER	171

Annexe A

Détermination de la pression dans les bulles HBS - Techniques expérimentales

Ce complément sur les outils expérimentaux utilisés pour déterminer la pression dans les bulles est extrait de la thèse de C.Cagna [Cag16].

A.1 Spectrométrie de Masse à Ionisation Secondaire (SIMS)

La spectrométrie de masse à ionisation secondaire (ou SIMS pour Secondary Ion Mass Spectrometry) est une technique d'analyse basée sur le bombardement d'une surface à analyser par un faisceau d'ions primaires. Le principe de la mesure SIMS est lié à la pulvérisation de la surface de l'échantillon par un faisceau d'ions primaires focalisé. Le faisceau ionique secondaire naît de l'ionisation d'une partie des espèces pulvérisées suite à l'interaction entre le faisceau primaire et la matière. Les ions secondaires sont extraits de l'échantillon afin d'être analysés à l'aide d'un spectromètre de masse couplé éventuellement avec un filtre en énergie. Le spectromètre de masse permet la séparation des ions en fonction de leur rapport masse/charge. La figure A.1 présente schématiquement le SIMS implanté au LECA du CEA Cadarache.

Le SIMS utilisé dans cette étude est un appareil de type IMS 6f de fabrication CAMECA nucléarisé afin de permettre l'étude d'échantillons irradiés. Il dispose de deux sources d'ions primaires : oxygène (O_2 , O) et césium (Cs) complétées par une colonne primaire permettant d'orienter et de focaliser le faisceau ionique à la surface de l'échantillon. La chambre dans laquelle se trouve l'échantillon (porté à haute tension) est maintenue sous un vide poussé (10^{-9} torr soit $1,3 \cdot 10^{-7}$ Pa).

La colonne secondaire a pour fonction d'assurer l'extraction, le transfert et la mise en forme du faisceau ionique jusqu'au spectromètre de masse. Le spectromètre de masse à double focalisation est constitué d'un secteur électrostatique et d'un secteur magnétique assurant respectivement une sélection en énergie puis une séparation des ions en fonction de leur rapport masse/charge. Les ions sont ensuite comptabilisés par différents systèmes de détection. Les performances générales de cette technique sont les suivantes :

- Une très grande sensibilité (de très faibles limites de détection) pour la quasi totalité des éléments de la classification périodique (analyse de traces) ;
- La détermination de profils de concentration à partir de la surface jusqu'à des profondeurs variables (nm au μm).
- La possibilité d'accéder à la composition des premières couches atomiques ou moléculaires et à

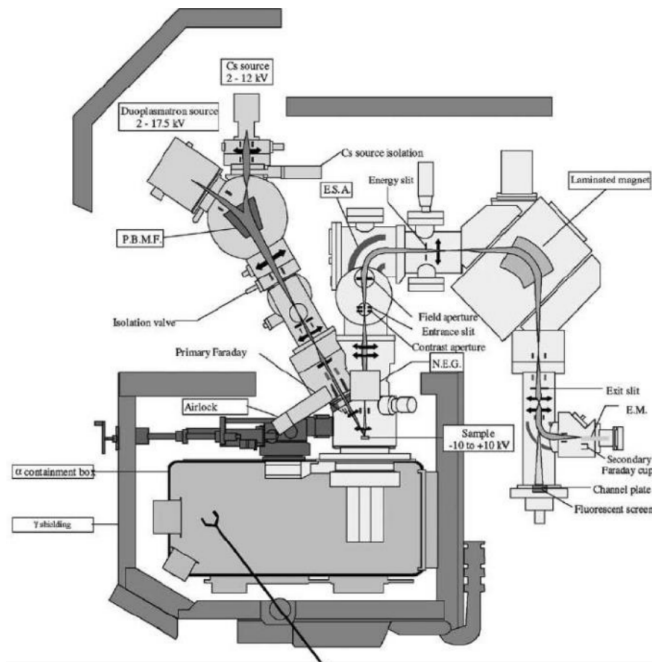


FIGURE A.1 – Schéma du fonctionnement du SIMS émissions des électrons et rayon X [RDP03].

l'analyse isotopique ;

- La localisation spatiale, avec une résolution latérale de l'ordre de $1 \mu\text{m}$, des éléments, et dans certains cas, des espèces chimiques.

A.2 Microsonde électronique (EPMA)

La microsonde électronique, EPMA (Electron Probe Micro Analysis), analyse l'émission X produite par l'interaction entre des électrons incidents et les éléments constituant le matériau à analyser. L'émission X issue du matériau est analysée sur plusieurs spectromètres à dispersion de longueur d'onde. Ce type de spectromètre est constitué d'un cristal monochromateur, d'un compteur proportionnel à flux gazeux et d'une chaîne de comptage. C'est une technique d'analyse non destructive permettant de quantifier tous les éléments à partir du béryllium, dans un volume de l'ordre du micromètre cube, avec une sensibilité d'environ 100 ppm. L'EPMA permet d'obtenir :

- Un spectre X élémentaire permettant une analyse qualitative ou semi quantitative du matériau ;
- Un tableau d'intensités X élémentaire à partir duquel la composition des éléments majeurs peut être calculée ;
- Des images de contraste chimique obtenues à partir de l'émission X locale ;
- Des images de contraste topographique grâce aux électrons secondaires et des images de contraste de composition chimique générées par les électrons rétrodiffusés.

L'équipement au LECA du CEA de Cadarache utilisé pour les études menées sur les échantillons vierges ainsi que sur les combustibles irradiés est une microsonde électronique de type SX100R fabriquée par CAMECA. Elle est composée d'une colonne électronique, de 4 spectromètres et d'une chambre d'analyse dans laquelle est située la platine motorisée porte objet. Les électrons sont émis par un canon à électrons qui peut être composé soit par un filament en tungstène soit d'une cathode en LaB_6 . Les spectromètres utilisés ont une gamme de mesure en $\sin\theta$ étendue de 25000 à 81000. Chaque spectromètre est lui-même équipé de plusieurs cristaux analyseurs.

Sur la figure A.2, le xénon mesuré correspond au xénon dissous dans le combustible et au xénon dans les bulles non percées, très proches de la surface (pics).

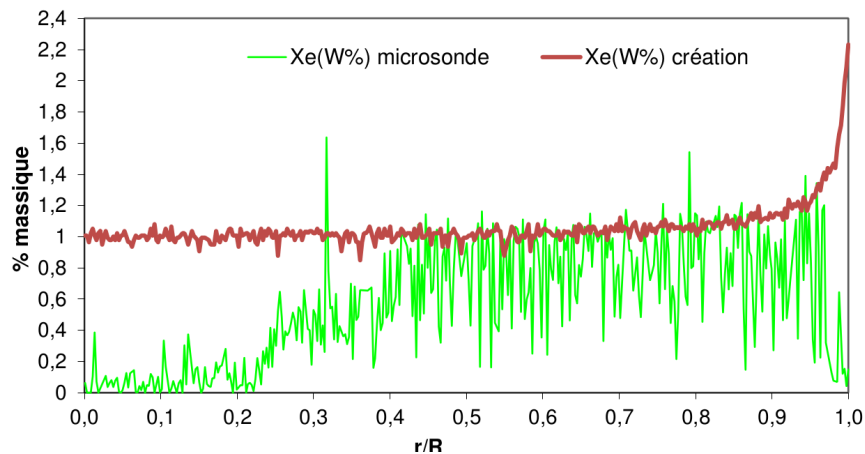


FIGURE A.2 – Profil radial de la concentration en xénon mesuré à la microsonde sur combustible UO_2

Le profil de création du xénon est estimé à partir du profil de Nd : élément de référence conservant un taux constant et qui est considéré comme directement proportionnel au taux de combustion local [NDL⁺04].

Dans le cas des combustibles irradiés, l'EPMA permet une mesure quantitative du xénon. Le recalage des profils SIMS avec les mesures quantitatives microsonde s'effectue dans une zone bien spécifique de la pastille. Il faut aussi prendre en compte le fait que le signal mesuré au SIMS est la contribution d'un seul isotope le ^{132}Xe , contrairement à celui de la microsonde qui est élémentaire. Les variations radiales du rapport $^{132}\text{Xe}/\text{Xe}$ sont faibles ($< 3\%$) [VDPR07] et donc généralement négligées.

La comparaison des deux techniques n'est envisageable que dans des zones où l'inventaire total en xénon est mesurable par les deux techniques, c'est-à-dire sous forme dissoute ou dans des petites bulles détectables à la microsonde (taille inférieure à quelques dixièmes de μm).

A.3 Microscope Électronique à Balayage (MEB)

Le MEB (Microscope Electronique à Balayage) est une technique de microscopie électronique capable de produire des images en haute résolution en balayant la surface d'un échantillon par un faisceau d'électrons.

Les détecteurs du MEB

La figure A.3 illustre l'ensemble des radiations émises lors de l'interaction entre le faisceau d'électrons et l'échantillon. Toutes ces radiations sont produites simultanément et rendent possibles à la fois l'observation et l'analyse de l'échantillon.

Les détecteurs d'électrons secondaires

Les électrons secondaires sont créés par le passage d'un électron incident près d'un atome. L'électron incident peut transmettre une partie de son énergie à un électron peu lié de la bande de conduction provoquant ainsi une ionisation par éjection de ce dernier électron. L'énergie cinétique de ce dernier

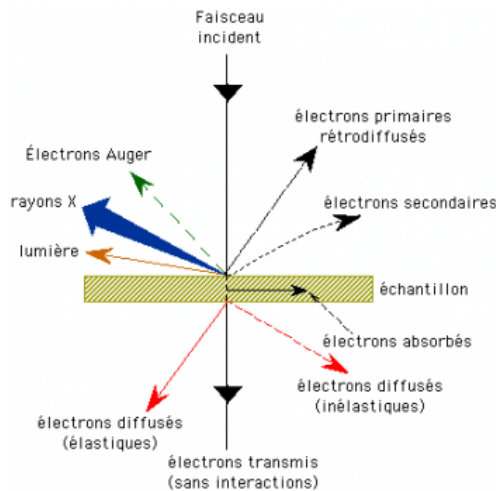


FIGURE A.3 – Radiation pouvant être émise lors de l'interaction entre le faisceau d'électrons et l'échantillon.

ne peut excéder 50 eV. Chaque électron incident peut créer plusieurs électrons secondaires. De par leurs faibles énergies, seuls les électrons secondaires émis proche de la surface (< 10 nm) peuvent s'échapper de l'échantillon et être recueillis par le détecteur. La moindre variation topographique va modifier la quantité d'électrons secondaires collectés. La détection des électrons secondaires s'effectue grâce à un détecteur dont on doit le principe à Everhart et Thornley (1960) qui utilise un système d'amplification de courant : le photomultiplicateur. Les électrons secondaires sont attirés par le collecteur (+300 V) et sont ensuite accélérés vers le scintillateur (10 kV) qui absorbe les électrons et émet des photons. Ceux-ci arrivent dans le photomultiplicateur à travers un guide de lumière. Dans le photomultiplicateur, les photons sont convertis en électrons qui vont très vite se multiplier grâce à une succession de dynodes.

Les détecteurs d'électrons rétrodiffusés

Les électrons rétro-diffusés sont causés par la collision entre un électron incident et un atome de l'échantillon. Ce sont des électrons primaires qui ont réagi de façon élastique avec des noyaux d'atomes de l'échantillon. Ils sont dispersés dans toutes les directions avec une faible perte d'énergie. Du fait de leur forte énergie, les électrons rétro-diffusés récupérés peuvent provenir d'une plus grande profondeur que celle des électrons secondaires (au-delà de 20 nm de profondeur). Ils ont une sensibilité topographique nettement inférieure. Du fait de leur origine, la quantité d'électrons rétro-diffusés croît avec le numéro atomique des atomes constitutifs de la cible. Le détecteur d'électrons rétro-diffusés est constitué de diodes silicium. Il comporte deux secteurs sensibles de même surface. Cela permet deux modes de fonctionnement :

- mode composition, les images obtenues d'un échantillon poli mettent en évidence les phases qui le constituent.
- mode topographique, les signaux provenant de la composition s'annulent et restent ceux venant de la topographie qui s'ajoutent.

A.4 Sonde ionique focalisée(FIB)

L'instrument FIB (Focused Ion Beam) est constitué d'une colonne ionique montée dans un microscope électronique à balayage. Le faisceau d'ions permet d'une part, d'usiner l'échantillon et d'autre

part, de faire une image soit électronique soit ionique (selon les détecteurs à disposition) pour contrôler l'usinage. La gravure ionique est suivie in situ par le microscope électronique. Les machines FIB travaillent généralement avec des ions gallium d'énergie comprise entre 1 et 30 kV. Après avoir sélectionné la zone d'intérêt dans le FIB, il est impératif de déposer sur sa surface un film métallique (platine, tungstène, ...) ou un film de carbone d'environ un micron d'épaisseur pour protéger la surface du matériau pendant l'amincissement.

Le FIB peut être utilisé comme un outil de micro-fabrication, pour modifier ou pour usiner la matière à l'échelle micrométrique ou nanométrique. Le micro-usinage d'un volume donné de matière, par abrasions successives, peut permettre une observation volumique du matériau, accompagné par des outils de reconstruction 3D. Une autre application est la préparation d'échantillons pour la Microscopie électronique en transmission (MET), tel que les lames minces qui peuvent aller jusqu'à 100 nm d'épaisseur.

Annexe B

Coefficient de diffusion atomique du xénon dans le grain D_{gb}^{Xe} pour CARACAS [JSB⁺14]

En reprenant les résultats de la synthèse écrite par Turnbull [TWW88], le coefficient de diffusion du xénon s'écrit sous la forme d'une somme de trois termes (respectivement termes thermique, mixte et athermique), selon l'expression :

$$D_{gr}^{Xe}(T_k, F) = D_{gr}^{Xe,1}(T_k) + 4D_{gr}^{Xe,2}(T_k, F) + 4D_{gr}^{Xe,3}(F) \quad (\text{B.1})$$

où T_k est la température en degrés Kelvin et F , la densité de fission exprimée par rapport au volume du fragment de combustible vierge en fission.m⁻³.

Le préfacteur 4 qui apparaît dans les deux derniers termes est dû à une réinterprétation par Turnbull en 1988 de résultats antérieurs [TWW88], [TFF⁺82]. Les différents coefficients de diffusion ainsi définis ont les caractéristiques suivantes :

— Le terme thermique s'écrit :

$$D_{gr}^{Xe,1}(T_k) = 7,6 \cdot 10^{-10} \exp\left(\frac{35225}{T_K}\right) \text{ en } m^2 \cdot s^{-1}. \quad (\text{B.2})$$

Cette formulation a originellement été proposée par Davies et Long [DL63]. L'énergie d'activation exprimée en eV vaut dans ce cas 3,04 eV.

— Le terme mixte se calcule selon l'expression simplifiée suivante [TFF⁺82], qui est le résultat d'un terme de création-recombinaison des paires de Frenkel :

$$D_{gr}^{Xe,2}(T_k, F) = s^2 j_v \left(\frac{K \Omega F}{j_v Z} \right)^{1/2} \quad (\text{B.3})$$

où

- s est la distance d'un saut atomique, $s = \Omega^{1/3}$,
- j_v est la fréquence de saut des cations, $j_v = 10^{13} \exp(-22778/T_k)$ en s^{-1} ,
- K est le nombre de défauts créés par fission, $K = 5 \cdot 10^5$,
- Z est le nombre de sites autour d'un défaut depuis lequel la recombinaison est inévitable, $Z = 100$. En utilisant l'ensemble des valeurs numériques précédentes, on obtient l'expression finale :

$$4D_{gr}^{Xe,2}(T_k, F) = 6,8 \cdot 10^{-25} \sqrt{F} \exp\left(-\frac{13889}{T_k}\right) \text{ en } m^2 \cdot s^{-1}. \quad (\text{B.4})$$

— Le terme athermique s'écrit

$$4D_{gr}^{Xe,3}(F) = 8.10^{-40} F \text{ en } m^2.s^{-1}. \quad (\text{B.5})$$

Annexe C

Gonflement des bulles intragranulaires et des bulles HBS

1. Gonflement intragranulaire

Le gonflement des bulles intragranulaires est dû à l'activation d'un flux lacunaire tendant à relaxer la sur-pression du gaz piégé dans ces cavités. L'approche mise en œuvre pour aboutir à l'expression du terme pris en compte dans l'équation d'évolution du volume de cette population se base sur une hypothèse d'état stationnaire, en considérant que l'ensemble des lacunes émises par les différentes sources va être absorbé par l'ensemble des puits [WMM79]. Les sources et puits pris en compte sont les bulles intragranulaires elles-mêmes ainsi que le joint de grain. Le gonflement des bulles intergranulaires est traité de manière dé耦lée de celui des bulles intragranulaires par l'approche de Speight [SB75]. L'équation bilan des lacunes s'écrit simplement :

$$\Sigma \text{lacunes émises} = \Sigma \text{lacunes absorbées.} \quad (\text{C.1})$$

Soit en introduisant les expressions des flux (en $\text{m}^{-3}.\text{s}^{-1}$) :

$$\Sigma_i \lambda_i c_{c,i}^e = \Sigma \lambda_i c_v, \quad (\text{C.2})$$

Avec :

- λ_i : fréquence d'absorption (resp. émission) des lacunes à la surface du puit (resp. de la source) i .
- $c_{c,i}^e$ concentration de lacunes à l'équilibre thermodynamique au voisinage du puit ou de la source i .
- c_v concentration de lacunes loin des sources et puits.

L'expression de la concentration de lacunes c_v s'écrit alors :

$$c_v = \frac{\Sigma_i \lambda_i c_{c,i}^e}{\Sigma_i \lambda_i} \quad (\text{C.3})$$

Les expressions des fréquences d'absorption/émission (en s^{-1}) pour les bulles intragranulaires et le joint de grain¹ [BHW80] s'écrivent :

$$\lambda_b = 4\pi r_b c_b D_v; \quad (\text{C.4})$$

$$\lambda_{gb} = \frac{6D_v}{R_{gr}\sqrt{4\pi r_b c_b}} \quad (\text{C.5})$$

1. Valeur asymptotique à utiliser dans le cas d'un fort piégeage intragranulaire, tel que $R_{gr}\sqrt{4\pi r_b c_b} \gg 1$.

Les concentrations à l'équilibre thermodynamique au voisinage des puits ou sources de lacunes s'écrivent :

$$c_{v,b}^e = c_v^e e^{(-P_{gr}^b - \frac{2\gamma}{r_b}) \frac{\Omega}{kT}}, \quad c_{v,gb}^e = c_v^e e^{(-P_{hydro} \frac{\Omega}{kT})}, \quad (C.6)$$

avec c_v^e , concentration de lacunes à l'équilibre thermodynamique en l'absence de contrainte externe.

Le bilan net de concentration de lacunes piégées par les bulles intragranulaires (en $m^{-3}.s^{-1}$) s'écrit :

$$4\pi r_b c_b D_v (c_v - c_{v,b}^e) = 4\pi r_b c_b D_v c_v^e \frac{\lambda_{gb}}{\lambda_b + \lambda_{gb}} \Delta_{exp} \left(P_{hydro}, P_{gr}^b - \frac{2\gamma}{r_{gr}^b} \right). \quad (C.7)$$

Il apparaît une différence d'exponentielles qui s'écrit selon :

$$\Delta_{exp} \left(P_{hydro}, P_{gr}^b - \frac{2\gamma}{r_{gr}^b} \right) = \exp\left(-\frac{P_{hydro}\Omega}{kT}\right) - \exp\left(-\frac{P_{gr}^b - \frac{2\gamma}{r_{gr}^b} \Omega}{kT}\right). \quad (C.8)$$

Dans le cas d'un mécanisme de diffusion lacunaire, D_v est relié à D_{gr}^u par la relation :

$$D_{gr}^u = \Omega D_v c_v^e; \quad (C.9)$$

D'où l'expression du terme d'évolution du volume des bulles intragranulaires

$$\frac{dV_{gr}^b}{dt} = \frac{4\pi r_{gr}^b c_{gr}^b D_{gr}^u}{1 + \frac{R_{gr}}{3} \sqrt{\pi} r_{gr}^b c_{gr}^b} \Delta_{exp} \left(P_{hydro}, P_{gr}^b - \frac{2\gamma}{r_{gr}^b} \right). \quad (C.10)$$

2. Gonflement des bulles de rim

L'approche retenue pour modéliser le phénomène de restructuration est une approche homogénéisée à l'échelle du fragment de combustible, prenant en compte une diffusion du gaz dissous et des mécanismes de piégeage/remise en solution du gaz dans des bulles de rim. Les arguments développés dans la section précédente s'appliquent formellement à ce nouveau problème, en transposant les variables introduites précédemment aux variables caractéristiques de la zone de rim. Notamment, le rayon du grain devient le rayon du fragment et le coefficient de diffusion doit être adapté. Le terme d'évolution du volume des bulles de rim s'écrit alors

$$\frac{dV_{hbs}^b}{dt} = \frac{4\pi r_{hbs}^b c_{hbs}^b D_{hbs}^u}{1 + \frac{2R_{f,hbs}}{3} \sqrt{\pi} r_{hbs}^b c_{hbs}^b} \Delta_{exp} \left(P_{hydro}, P_{hbs}^b - \frac{2\gamma}{r_{hbs}^b} \right) \quad (C.11)$$

Annexe D

Convergence au maillage sur fuseau pastille monodisperse

L'étude de convergence au maillage sur les fuseaux HBS polydisperse pastille et polydisperse disque a été présentée au chapitre 4. Pour le fuseau monodisperse, six tailles de maille r_{maille} entre 0.18 et $0.33 \mu\text{m}$ ont été analysées. Dans le script, le raffinement est déterminé par rapport au rayon de la plus petite bulle, ici $r = 0.5 \mu\text{m}$. La taille de maille est calculée par le paramètre r_{tail} où $r_{maille} = \frac{r}{r_{tail}}$. Les calculs élastiques aux éléments finis sont réalisés grâce à des éléments tétraédriques quadratiques, possédant dix nœuds et quatre points de d'intégration. Chaque maillage est illustré figure D.1 avec son paramètre r_{tail} . Les propriétés des maillages ainsi que les résultats sur la contrainte principale max dans la matrice (comportement élastique) sont rassemblés dans le tableau D.1.

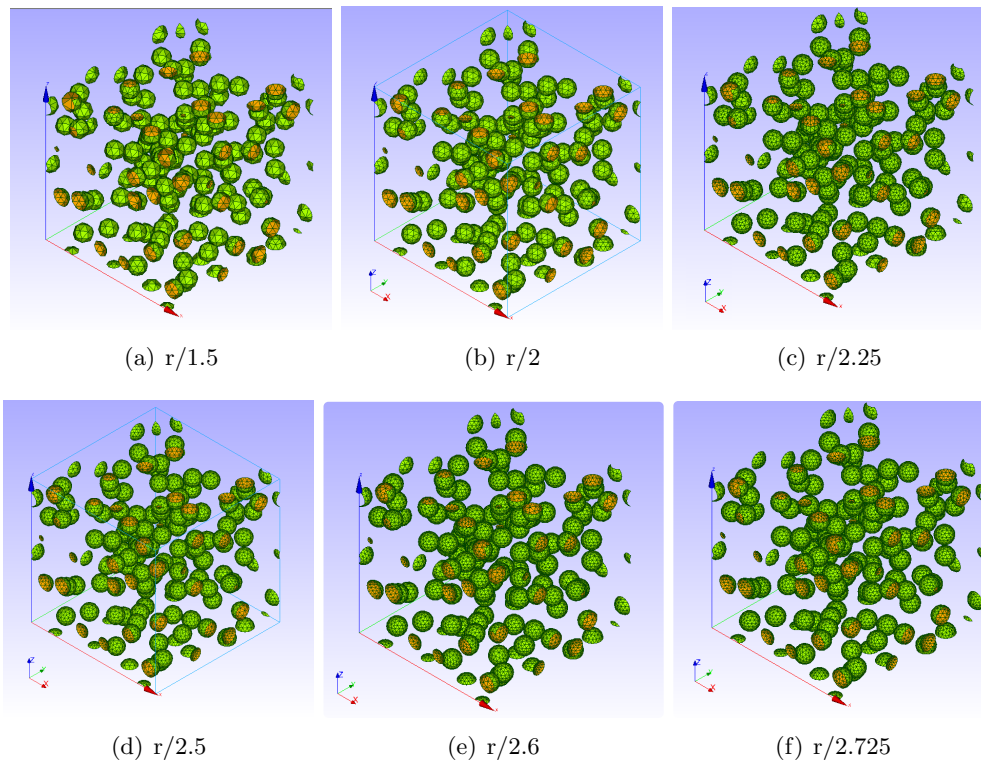


FIGURE D.1 – Raffinement des bulles du fuseau monodisperse pour l'étude de la convergence au maillage.

Raffinement	Éléments	Noeuds	Maximum de la contrainte principale max $\sigma_{I \text{ Max}}$ (MPa)	Contrainte moyenne dans la matrice (MPa)
r/ 1.5	73 344	94 658	293	22
r/ 2	140 451	207 934	360	23
r/ 2.25	181 844	297 159	353	23
r/ 2.5	200 118	312 754	459	23
r/ 2.6	240 301	364 092	440	23
r/2.725	267 372	411 275	442	23

TABLE D.1 – Caractéristiques des maillages et contraintes principales obtenues pour un chargement dans les bulles de 200 MPa, pour le fuseau pastille monodisperse ($9 \mu\text{m}$).

Le graphique D.2 donne la fraction volumique des éléments de la matrice en fonction de la contrainte atteinte dans ceux-ci. Les deux maillages possédant la plus petite taille de maille (pour les raffinements r/2.6 et r/2.725) donnent des résultats similaires. Le maillage légèrement plus grossier (r/2.5) possède 15% d'éléments en moins (200 000 au lieu de 240 000) mais fournit des résultats similaires (soit gain de 4% sur la contrainte, environ 16 Mpa) Compte tenu de l'économie de temps et de mémoire et du faible gain entre les deux raffinements, le raffinement r/2.5 est choisi comme taille de maille convergée pour ce fuseau, permettant de produire des résultats similaires avec moins d'éléments.

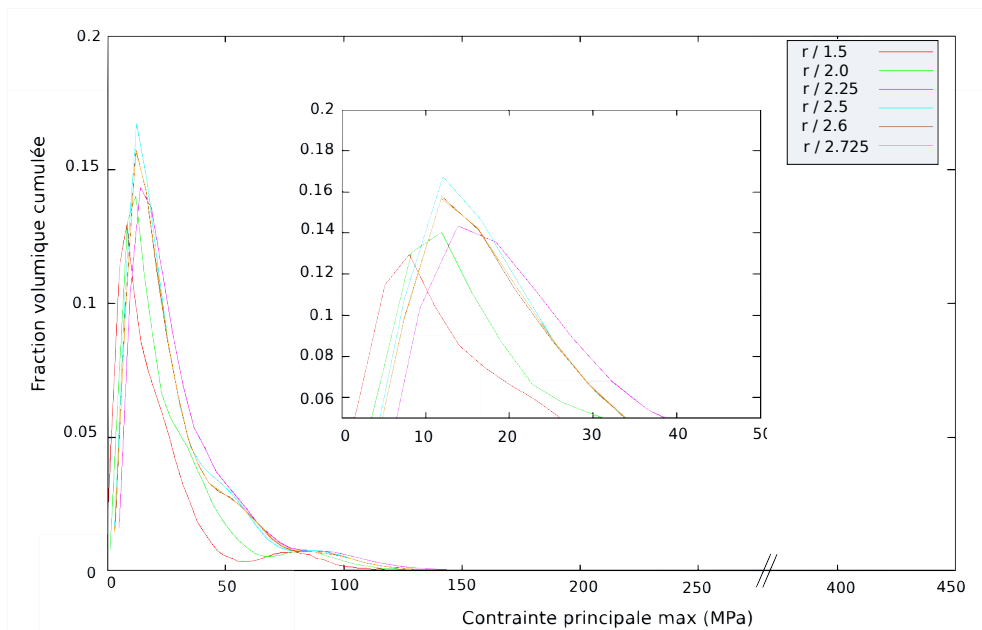


FIGURE D.2 – Fraction volumique des éléments fonction de leur contrainte principale max.

Annexe E

Résultats élastiques sur 20 tirages du fuseau pastille polydisperse

Cette annexe présente pour le fuseau pastille polydisperse les vingt tirages RSA réalisés pour l'étude statistique réalisée du chapitre 4. Les bulles ayant une répartition aléatoire, la concentration de contrainte dans la matrice est modifiée d'un tirage à l'autre, en fonction de la fonction de répartition des distances entre les bulles. Il en résulte que certaines configurations seront plus enclines à faire amorcer la fissuration là où les concentrations de contraintes sont les plus fortes. Les écarts sur la contrainte principale max dans la matrice, pour un comportement élastique et un chargement de pression dans les bulles de 200 MPa ont été quantifiés à 24 %. La figure E.3 présente l'arrangement des vingt tirages étudiés.

Dimensions	Taux de porosités	Nombre de bulles
9 μm	9,01 %	147

TABLE E.1 – Propriétés géométriques du VER

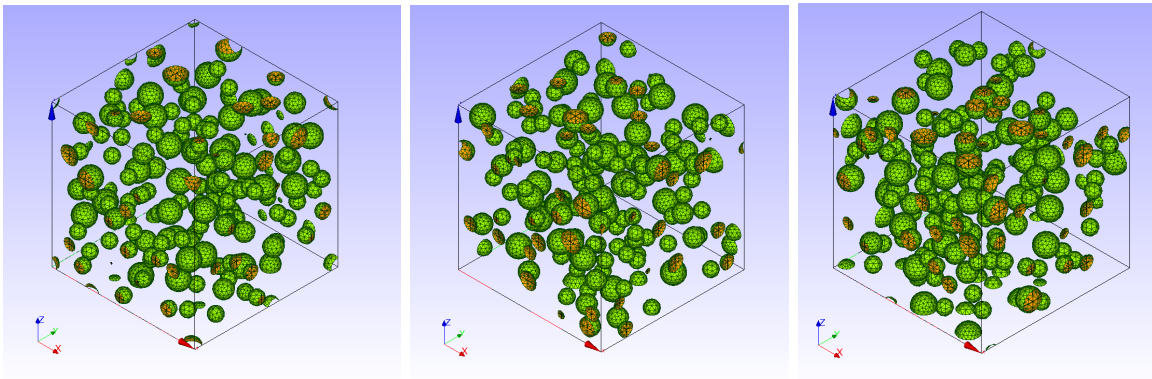


FIGURE E.1 – Vingt réalisations du VER pastille polydisperse de 9 μm , pour 147 bulles

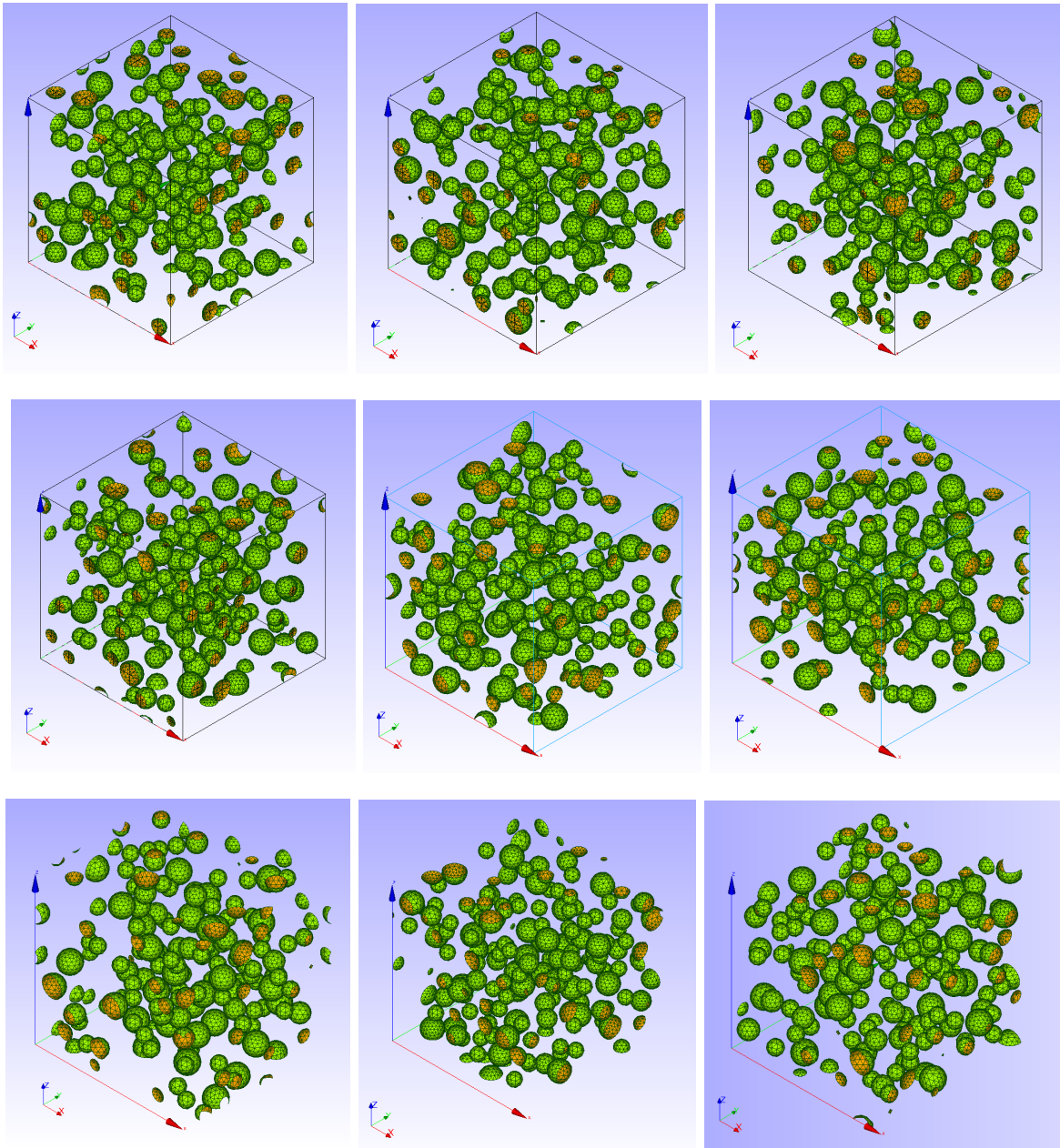


FIGURE E.2 – Vingt réalisations du VER pastille polydisperse de $9\mu\text{m}$, pour 147 bulles

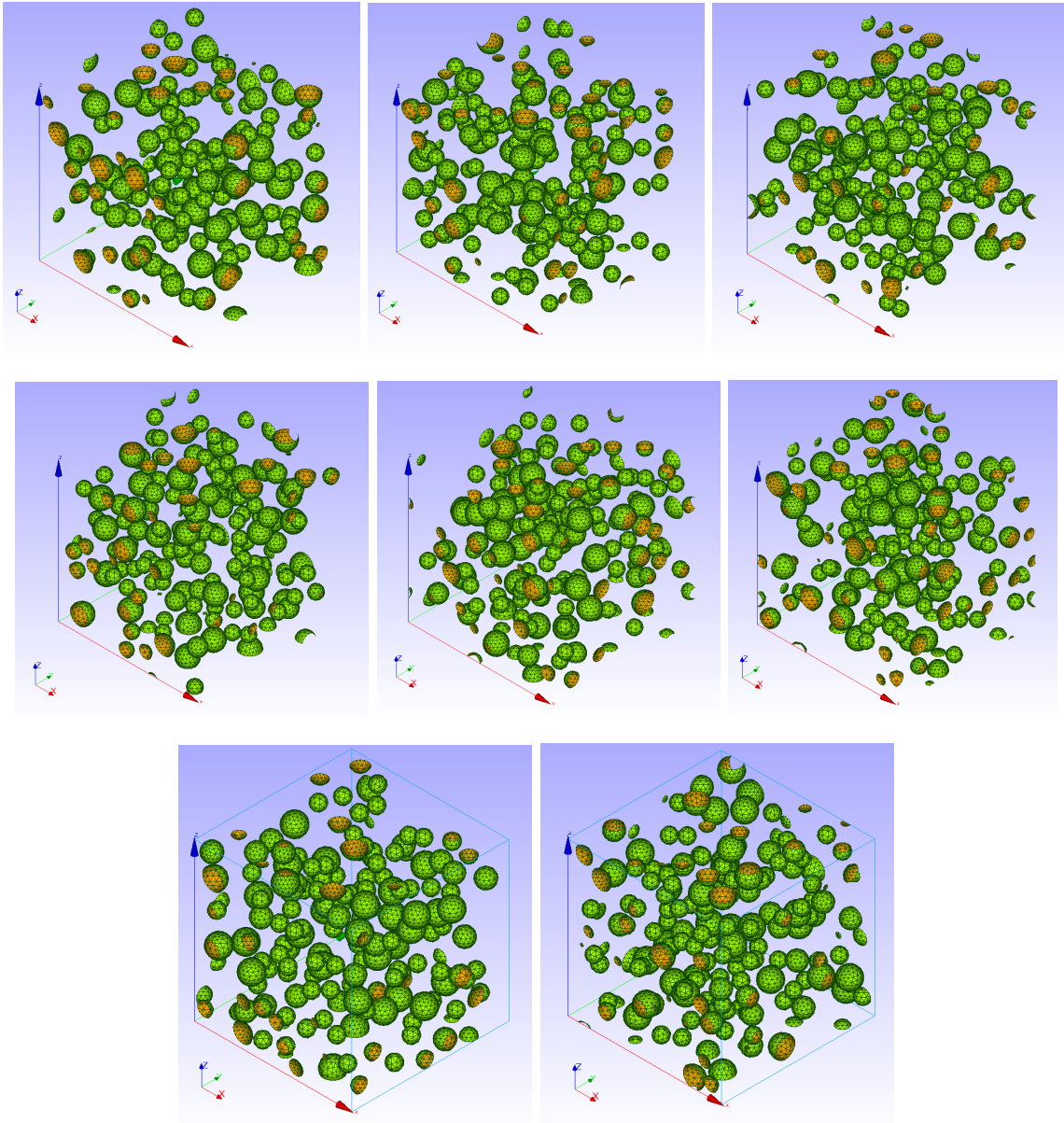


FIGURE E.3 – Vingt réalisations du VER pastille polydisperse de $9\mu\text{m}$, 147 bulles.

Annexe F

Système implicite de la loi de comportement DDIF2

Le système d'équations différentielles associé à la loi de comportement est le suivant.

$$\left\{ \begin{array}{l} \sigma = E : \varepsilon^{\text{él}}, \\ \varepsilon^{\text{él}} = \varepsilon^{\text{tot}} - \varepsilon^{\text{fis}}, \\ \varepsilon^{\text{fis}} = \sum_i \varepsilon_i^{\text{fis}} \cdot \mathbf{n}_i \otimes \mathbf{n}_i \\ g(\sigma : \mathbf{n}_i, \varepsilon^{\text{fis}}) = 0 \end{array} \right. \quad (\text{F.1})$$

Calcul de la déformation de la fissure à l'instant t

$\varepsilon_i^{\text{fis}}$ représente la variable interne de la déformation de fissuration entre les instants 0 et t.

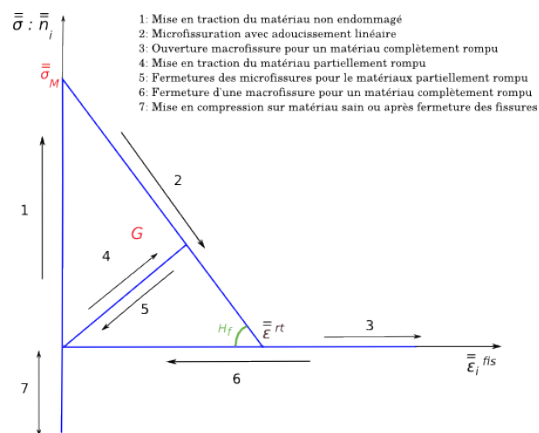


FIGURE F.1 – Loi DDIF2 : différentes phases de chargement/déchargement prise en compte.

Le tableau ci-dessous permet de calculer la déformation inélastique selon les 7 cas de chargements décrits ci-dessus figure F.1.

Chargement	Conditions requises	Déformation de fissuration
1	$\varepsilon_i^{fis} _{max(t)} = 0, \sigma : \mathbf{n}_i < \sigma_M$	$\varepsilon_i^{fis} = 0$
2	$0 < \varepsilon_i^{fis} _{max(t)} \leq \frac{\sigma_M}{H_f}$ $\varepsilon_i^{fis} = \varepsilon_i^{fis} _{max(t)}$	$\left[\mathbf{E} : \left(\boldsymbol{\varepsilon}^{tot} - \boldsymbol{\varepsilon}^{fis} \right) \right] : \mathbf{n}_i^{fis} - \left(\sigma_M \cdot H_f \cdot \varepsilon_i^{fis} \right) = 0$
3 et 6	$0 < \frac{\sigma_M}{H_f} \varepsilon_i^{fis} < \varepsilon_i^{fis} _{max(t)}$	$\left[\mathbf{E} : \left(\boldsymbol{\varepsilon}^{tot} - \boldsymbol{\varepsilon}^{fis} \right) \right] : \mathbf{n}_i = 0$
4 et 5	$0 < \varepsilon_i^{fis} _{max(t)} < \frac{\sigma_M}{H_f}$ $0 < \varepsilon_i^{fis} < \varepsilon_i^{fis} _{max(t)}$	$\left[\mathbf{E} : \left(\boldsymbol{\varepsilon}^{tot} - \boldsymbol{\varepsilon}^{fis} \right) \right] : \mathbf{n}_i - \left(\frac{\sigma_M}{\varepsilon_i^{fis} _{max(t)}} - H_f \right) \cdot \varepsilon_i^{fis} = 0$
7	$0 < \varepsilon_i^{fis} _{max(t)}; 0 = \varepsilon_i^{fis}$	$\varepsilon_i^{fis} = 0$

Intégration implicite : La fonction inconnue σ est remplacée par sa valeur en fonction de ε^{el} à partir de la loi de Hooke (première équation du problème local F.2). Le système implicite est réduit au vecteur inconnu $\left(\Delta \varepsilon^{el}; \Delta \varepsilon_i^{fis} \right)$, avec i de 1 à 3.

$$\begin{cases} f_{\Delta \varepsilon^{el}} = \Delta \varepsilon^{el} + \sum_{i=1}^3 \varepsilon_i^{fis} \cdot \mathbf{n}_i - \Delta \varepsilon^{tot} = \mathbf{0} \\ f_{\Delta \varepsilon_i^{fis}} = g \left(\sigma \Big|_{t+\Delta t} : \mathbf{n}_i, \varepsilon_i^{fis} \Big|_t + \Delta \varepsilon_i^{fis} \right) = 0 \end{cases} \quad (\text{F.2})$$

Pour le calcul du jacobien on utilise les relations suivantes :

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2}} \cdot \mathbf{S} : \mathbf{S} \quad (\text{F.3})$$

$$\mathbf{S} = \mathbf{K} : \boldsymbol{\sigma} \quad (\text{F.4})$$

$$\mathbf{K} = \mathbf{I} - \frac{1}{3} \mathbf{I} \otimes \mathbf{I} \quad (\text{F.5})$$

$$\mathbf{n} = \frac{\partial \sigma_{eq}}{\partial \boldsymbol{\sigma}} = \frac{3}{2} \frac{\mathbf{S}}{\sigma_{eq}} \quad (\text{F.6})$$

$$\frac{\partial \mathbf{n}}{\partial \boldsymbol{\sigma}} = \frac{1}{\sigma_{eq}} \left(\frac{3}{2} \cdot \mathbf{K} - \mathbf{n} \otimes \mathbf{n} \right) \quad (\text{F.7})$$

Jacobien du système implicite :

1er Bloc associé aux lignes de l'équation tensorielle $f_{\Delta \varepsilon}$

$$\frac{\partial f_{\Delta \varepsilon}}{\partial \Delta \boldsymbol{\varepsilon}} = \mathbf{I} \quad (\text{F.8})$$

$$\frac{\partial f_{\Delta \varepsilon}}{\partial \Delta \varepsilon_i^{fis}} = \mathbf{n}_i \quad (\text{F.9})$$

2nd Bloc associé aux lignes de l'équation tensorielle $f_{\Delta\varepsilon_i^{fis}}$:

$$\frac{\partial f_{\Delta\varepsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta\varepsilon^{el}} = \frac{\partial g\left(\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{n}_i, \varepsilon_i^{fis}|_t + \Delta\varepsilon_i^{fis}\right)}{\partial\left(\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{n}_i\right)}\Big|_{t+\Delta t} \cdot \frac{\partial(\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{n}_i)}{\partial\boldsymbol{\sigma}}\Big|_{t+\Delta t} : \frac{\partial\boldsymbol{\sigma}}{\partial\varepsilon^{el}}\Big|_{t+\Delta t} : \frac{\partial\varepsilon^{el}}{\partial\Delta\varepsilon^{el}}\Big|_{t+\Delta t}; \quad (\text{F.10})$$

$$\frac{\partial f_{\Delta\varepsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta\varepsilon^{el}} = \frac{\partial g\left(\boldsymbol{\sigma} : \text{tod}n_i, \varepsilon_i^{fis}|_t + \Delta\varepsilon_i^{fis}\right)}{\partial\left(\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{n}_i\right)}\Big|_{t+\Delta t} \cdot \mathbf{n}_i; \mathbf{E} \quad (\text{F.11})$$

$$\frac{\partial f_{\Delta\varepsilon_i^{fis}}}{\partial \Delta\varepsilon_i^{fis}} = \frac{\partial g\left(\boldsymbol{\sigma} : \mathbf{n}_i, \varepsilon_i^{fis}|_t + \Delta\varepsilon_i^{fis}\right)}{\partial\varepsilon_i^{fis}}\Big|_{t+\Delta t} \quad (\text{F.12})$$

Résumé

La reproduction expérimentale de transitoires thermiques accidentels de type Accident par Perte de Réfrigérant Primaire (APRP) en laboratoire a permis d'observer la fragmentation du combustible fortement irradié lorsque la gaine se déforme sous l'augmentation de la température. Ces fragments de petites tailles peuvent se relocaliser dans le ballon ou en cas de rupture de gaine, être éjectés hors du crayon combustible. La zone High Burnup Structure (HBS) des combustibles fortement irradiés est la plus susceptible de se fragmenter et d'être relocalisée par sa position en périphérie de pastille. Une hypothèse pour expliquer la présence de ces fragments est que le transitoire provoque une surpression dans les bulles HBS situées aux joints de grains (JDG) de la zone HBS qui mène à leur décohésion. Cette thèse a pour but de développer un critère de fissuration mécanique du combustible qui permet de mieux comprendre le comportement du combustible fortement irradié lors de la montée en pression des bulles HBS en utilisant une méthode micromécanique qui prend en compte la microstructure du combustible et les principes de la mécanique de la rupture. Ce travail est composé de trois étapes : i) l'étape de représentation permet de caractériser les bulles HBS (leurs dimensions, leur fraction volumique, et la pression interne). Deux sources d'informations seront utilisées : les observations expérimentales provenant de disques ou de pastilles de combustible irradiés à fort taux de combustion et d'outils numériques (avec ALCYONE-CARACAS [JSB⁺14]). De cette analyse est construit un VER en 3D de la microstructure HBS qui sera utilisé pour ii) la localisation. Cette seconde étape consiste à réaliser des calculs éléments finis (avec Cast3m [cas90]) en champs complets avec une loi d'endommagement locale de type zone cohésive pour étudier la fissuration du matériau sous un chargement de pression des bulles. Cette étude permet d'analyser la fragmentation et de déterminer les modes de fissuration locaux, un champ scalaire qui traduit l'état d'endommagement du matériau et sert de donnée d'entrée au critère de rupture macroscopique, décrit dans iii) l'étape d'homogénéisation. Le critère de rupture développé est de type Griffith et est établi sur la base de la méthode NTFA et de la formulation variationnelle de la rupture de Francfort-Marigo. La méthode mise en place dans ce travail est alors capable de donner l'instant de rupture du combustible ainsi que son état (rompu ou non).

Mots-clés : Combustible / nucléaire / UO_2 / APRP / microstructure / HBS / fragments / micromécanique / rupture fragile / endommagement / Éléments finis

Summary

Under Loss Of Coolant Accident(LOCA) transients conditions, the high irradiated fuel is fragmented in small sizes fragments whose can be relocated in the balloon, or being ejected out of the fuel rod if the latter burst. This work focuses on the pellet rim, where bubbles density increases owing to a higher irradiation level. Usually the hypothesis used to explain fuel fragmentation during transient is grain cleavage induced by over pressurized fission gas bubbles, located at the grain boundary. The aim of this study is to define a macroscopic fragmentation model based on a micro mechanical approach to have a better understanding of the fuel mechanical behaviour at lower scale : size and volume fraction of fragments. This PhD introduces a stepwise micromechanical method based on three steps : i) firstly, we detail how to model the HBS microstructure including pressurized porosities, based on experimental or numerical data and define a Representative Volume Element (RVE). The HBS bubbles can be characterized to determine their dimensions, their volume fraction, and their internal pressure. Two sources of information will be used : experimental observations from burned fuel discs or fuel pellets with high combustion rates and digital tools (with ALCYONE-CARACAS [JSB⁺14]). A 3D VER for the HBS area is built on these analyses for the localization step. This second step consists in carrying out Finite Element Calculations (with Cast3m [cas90]) in Full Fields with a cohesive model using a local damage behaviour law to study the cracking path into the material under bubble pressure. We use 3D full field computations in order to determine the crack snapshot. Elastic computations are performed to find the bubbles pressure level which is required to reach the cracks initiation threshold. Then nonlinear computations, using a failure local behaviour law, are conducted to identify the failure snapshots. The latter will be used as an input for the homogenization step. The fracture criterion developed is a Griffith's criterion type condition, established from the NTFA method and the variational formulation of fracture mechanics of Francfort-Marigo. Finally, the method developed in this work is able to give the state of the fuel (broken or not) at the scale of the pellet for the zone HBS.

Keywords : UO_2 / fuel / fragments / LOCA / HBS / microstructure / micromechanics / fuel failure / cracks mechanic / FEM.